

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19)世界知的所有権機関
国際事務局



(43)国際公開日
2001年1月4日 (04.01.2001)

PCT

(10)国際公開番号
WO 01/00728 A1

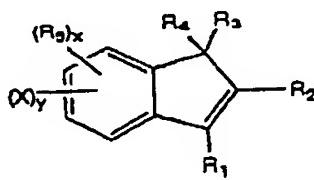
- (51) 国際特許分類⁷: C08L 45/00.
25/00, G02B 1/04, G11B 7/24
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/04215
- (22) 国際出願日: 2000年6月27日 (27.06.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願平11/181181 1999年6月28日 (28.06.1999) JP
特願平11/181182 1999年6月28日 (28.06.1999) JP
特願2000/24774 2000年1月28日 (28.01.2000) JP
特願2000/24775 2000年1月28日 (28.01.2000) JP
特願2000/24776 2000年1月28日 (28.01.2000) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 日立化成工業株式会社 (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒163-0449 東京都新宿区西新宿二丁目1番1号 新宿三井ビル 私書箱233号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 山下幸彦 (YAMASHITA, Yukihiko) [JP/JP]; 〒290-0158 千葉県市原
- 市ちはら台6-9-6 Chiba (JP). 岩田修一 (IWATA, Shuichi) [JP/JP]; 〒290-0037 千葉県市原市飯沼173 飯沼寮126号室 Chiba (JP). 山中哲郎 (YAMANAKA, Tetsuo) [JP/JP]; 〒290-0037 千葉県市原市飯沼173 飯沼寮146号室 Chiba (JP). 吉田明弘 (YOSHIDA, Akihiro) [JP/JP]; 〒290-0051 千葉県市原市君塚3-6-16 サンライズシティ池田A208 Chiba (JP). 牛窪恵子 (USHIKUBO, Keiko) [JP/JP]; 〒297-0034 千葉県茂原市中の島町752 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 遠山 勉, 外 (TOYAMA, Tsutomu et al.); 〒103-0004 東京都中央区東日本橋3丁目4番10号 ヨコヤマビル6階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(国内): JP, KR, US.
- (84) 指定国(広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類:
— 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTがゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイドスノート」を参照。

(54) Title: LOW-HYGROSCOPICITY LOW-BIREFRINGENCE RESIN COMPOSITIONS, MOLDING MATERIAL OBTAINED THEREFROM, SHEET OR FILM, AND OPTICAL PART

(54) 発明の名称: 低吸湿低複屈折樹脂組成物、これから得られる成形材、シート又はフィルムおよび光学用部品



(I)

(57) Abstract: Low-hygroscopicity low-birefringence resin compositions. One of the compositions is a resin composition (a) comprising the following polymer (A) and polymer (B) and/or (C). Another is a resin composition (b) comprising the following polymers (A), (B), and (H). Still another is a resin composition (c) comprising the following polymers (I) and (J), a diphenylsilicone (D), and a phenolic antioxidant (E). (A) A polymer comprising units of indene or an indene derivative represented by general formula (I). (B) Polystyrene or a derivative comprising a polystyrene derivative. (C) A polymer obtained from styrene or a styrene derivative and a copolymerizable monomer. (H) A graft polymer comprising the polymer (C) and bonded to a side chain thereof a polymer comprising units of indene or an indene derivative represented by general formula (I). (I) A polymer comprising the polymer (A) having a heterocyclic structure in a side chain thereof. (J) A polymer comprising the polymer (C) having a carboxyl group and/or a phenolic hydroxyl group in a side chain thereof.

tive and a copolymerizable monomer. (H) A graft polymer comprising the polymer (C) and bonded to a side chain thereof a polymer comprising units of indene or an indene derivative represented by general formula (I). (I) A polymer comprising the polymer (A) having a heterocyclic structure in a side chain thereof. (J) A polymer comprising the polymer (C) having a carboxyl group and/or a phenolic hydroxyl group in a side chain thereof.

WO 01/00728 A1

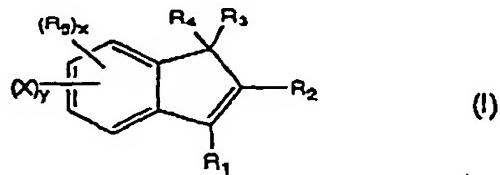
(続葉有)



(57) 要約:

下記の重合体（A）、（B）及び/又は（C）を含む樹脂組成物（a）、重合体（A）、（B）及び（H）を含む樹脂組成物（b）、重合体（I）、（J）、ジフェニルシリコーン（D）及びフェノール系酸化防止剤（E）を含む樹脂組成物（c）を作成し、低吸湿、低屈折樹脂組成物を提供する。

- （A）一般式（I）で示されるインデン又はインデン誘導体を含む重合体
- （B）ポリスチレン又はポリスチレン誘導体からなる誘導体
- （C）スチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な单量体からなる重合体
- （H）重合体（C）の側鎖に、一般式（I）で示されるインデン又はインデン誘導体を含む重合体が結合したグラフト重合体
- （I）重合体（A）の側鎖に複素環構造を有する重合体
- （J）重合体（C）の側鎖にカルボキシル基及び/又はフェノール性水酸基を有する重合体



そこで、アクリル樹脂を改良するため、すなわち欠点である吸湿性の高さと耐熱性の低さを解決するために多くの検討がなされている。例えば、嵩高い置換基を有するモノマーを用いることによって吸湿性と耐熱性を改善する方法（特許第2678029号公報）がある。この発明では確かにある程度の効果はあるものの、ポリオレフィン系樹脂の吸湿率の低さには及ばない。更に生じる問題点として、嵩高い置換基が側鎖に存在するが故に韌性及び強度の低下が著しく、特に成形加工時に破損しやすくなることが挙げられる。これを改善する目的で、柔軟性を付与するモノマーを共重合することによって韌性を付与しようとする方法があるが、耐熱性の低下は避けることができず、せっかくの嵩高い置換基を導入した効果が薄れてしまう。

ポリオレフィン系樹脂は、吸湿性の低さと耐熱性の高さは光学用樹脂として極めて大きな利点であるが、近年の光学機器の高度化に伴い、複屈折性の高さが大きな欠点となっており、ポリオレフィン系樹脂の複屈折性を低減する試みは最近特に活発に行われている。

例えば、特開平8-110402号公報を挙げることができる。この発明は、ポリオレフィン系樹脂の複屈折性と反対の符号の複屈折を有する樹脂又は低分子化合物を混合することによってその樹脂固有の複屈折を相殺し、樹脂混合物の複屈折を0にしようとするものである。この方法では、混合する樹脂とポリオレフィン系樹脂が完全に相溶化していることが必要である。ところが、上記発明ではポリオレフィン系樹脂と請求されている樹脂の相溶性が不十分であり、充分な効果が得られていない。

そこで、できる限り完全相溶化することを目的として、相溶化剤を第3成分として添加する方法がポリマーのアロイ化技術として行われており、具体的には米国特許4373065号に記載されている。両者を高い均一度で混合させるためには溶融状態又は溶液状態にしなければならないが、如何なる物理的方法を用いても高い均一度で全体的に複屈折のない実用的な高分子材料を得ることは極めて困難とされている。

これらの課題を解決する方法として、特願平8-199901号公報が開示されている。この方法では、樹脂組成物の射出成形時に金型から製品を取り外す際

明細書

低吸湿低複屈折樹脂組成物、これから得られる成形材、シート又はフィルムおよび光学用部品

技術分野

本発明は、低吸湿性、低複屈折性、低誘電率性であり、流動性に優れ、加熱時の色変化が少なく、射出成形時の離型性に優れる樹脂組成物、この樹脂組成物を成形して得られる成形材、シート、フィルム及び光学用部品に関する。

背景技術

反応活性のある不飽和結合を有する单量体の多くは、不飽和結合を開裂し連鎖反応を生起できる触媒と適切な反応条件を選択することにより多量体を製造することができる。一般に不飽和結合を有する单量体の種類は極めて多岐にわたることから、得られる樹脂の種類の豊富さも著しい。しかし、一般に高分子化合物と称する分子量1万以上の高分子量体を得ることができる单量体の種類は比較的少ない。例えば、エチレン、置換エチレン、プロピレン、置換プロピレン、スチレン、アルキルスチレン、アルコキシスチレン、ノルボルネン、各種アクリルエステル、ブタジエン、シクロペニタジエン、ジシクロペニタジエン、イソブレン、マレイン酸無水物、マレイミド、フマル酸エステル、アリル化合物等を代表的な单量体として挙げることができる。これらの单量体又は種々の組み合わせから多種多様な樹脂が合成されている。

これらの樹脂の用途は主に、比較的安価な民生機器の分野に限られており、半導体関連材料等のハイテク分野への適用は殆どない。その理由には、耐熱性、低吸湿性、誘電率の並立が達成できていないことが挙げられる。

例えば、半導体関連材料の分野では、近年の集積度の高密度化により従来の耐熱性、低吸湿性に加えて、低誘電率化が望まれている。低誘電率化を達成するためには樹脂中の極性基量を低減することが原理的に不可欠である。現在、半導体

3

用樹脂にはポリイミドが多く用いられているが、樹脂骨格中に多くのカルボニル基を含有するため低誘電率化に苦慮しているのが現状である。その対策として、フッ素を含有したモノマーを用いた研究が盛んに行われているが、充分な低誘電率化が達成できたとは言えない。また、樹脂価格が上がる、又は合成が煩雑である等の問題点がある。

他の方法としては、極性基を全く含まない炭化水素からなる重合体の合成が試みられている。例えば、環状ポリオレフィンと呼ばれる一群の高分子を挙げることができる。具体的にはポリノルボルネンを水添した高分子、又はポリジシクロペニテン及びその誘導体からなる高分子を挙げることができる。これらの高分子を、極めて低い誘電率を実現できることが可能であるが、耐熱性が低いことと、吸水率は極めて低いものの水の透過率が非常に高いという問題点がある。特に水の透過率の高さはポリオレフィンに共通した特徴であり、これを解決することは極めて困難と考えられる。

その他には、チーグラーナッタ触媒又はカミンスキ触媒を用いて合成したシンジオタクチックポリスチレンを挙げることができる。この高分子はベンゼン環の主鎖に対する立体位置が交互に反対方向に位置している構造を有しており、非常に高い耐熱性を実現していると同時に、極めて低い吸水率と水の透過性並びに誘電率も非常に低いレベルを達成することができる。しかし、この高分子は結晶性が非常に高いために基材への密着性が著しく悪い欠点があり、あらゆる溶媒に対して溶解しないため、加工方法が著しく限定されてしまうという問題点がある。すなわち、現在、上記の課題を解決できる高分子は未だ開発されていない。

一方、光学用途として光学レンズ、光導波路材等に用いられるポリマーには、アクリル系樹脂、ポリオレフィン系樹脂が挙げられる。アクリル系樹脂は優れた透明性と加工性及び極めて低い複屈折性を有する特徴を挙げることができる。しかし、吸湿性が高く、耐熱性が比較的低い、韌性が低いという欠点がある。それに対して、ポリオレフィン系樹脂は優れた耐熱性と極めて低い吸湿性を有しているが、透明性と低複屈折性はアクリル系樹脂に及ばない。すなわち、アクリル樹脂にもポリオレフィン系樹脂にも一長一短があり、アクリル系樹脂とポリオレフィン系樹脂の欠点を相補う樹脂の開発が強く望まれている。

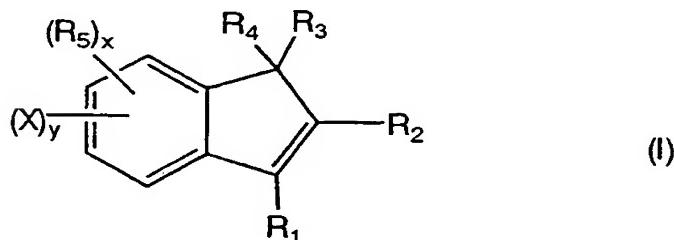
に金型に樹脂の一部が残存してしまう、又は離型時に製品が破損する等の問題点がある。また、成形機中に長時間滞留した際に、製品の色が変化する欠点もある。

発明の開示

本発明は、低吸湿性、低複屈折性、低誘電率性であり、流動性に優れ、加熱時の色変化が少なく、射出成形時の離型性に優れる樹脂組成物、この樹脂組成物を成形して得られる成形材、シート又はフィルム及び光学用部品を提供するものである。

本発明は、下記（1）～（22）に関する。

- (1) 下記の重合体（A）、（B）及び／又は（C）を含む樹脂組成物（a）。
 - (A) 下記一般式（I）で示されるインデン又はインデン誘導体を1種またはそれ以上含む重合体
 - (B) ポリスチレン又はポリスチレン誘導体からなる重合体
 - (C) スチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な单量体からなる重合体



（式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅、R₆は同一であっても異なっていても良く、水素原子；窒素原子、酸素原子又はケイ素原子を含有する1価の炭化水素基；炭素数1～6のアルキル基；1価の芳香族系炭化水素基を示す。Xは水素原子、ハロゲン原子、アシル基、アルコキシ基又はニトリル基を示す。xは0または1～4の整数を示し、yは1～4の整数を示す。但しx+y=4である。）

(2) 重合体（A）、（B）及び／又は（C）を含む樹脂組成物に、ジフェニルシリコーン（D）及び／又はフェノール系酸化防止剤（E）を添加した（1）の樹脂組成物（a）。

5

(3) 飽和吸水率は0.4%以下であり、200%延伸時の複屈折率は $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-6}$ の範囲にある(1)又は(2)の樹脂組成物(a)。

(4) 前記重合体(A)の重量平均分子量は、80000未満である(1)～(3)のいずれかの樹脂組成物(a)。

(5) 前記重合体(B)及び／又は前記重合体(C)の重量平均分子量は、50000以上である(1)～(4)のいずれかの樹脂組成物(a)。

(6) 前記重合体(A)は、樹脂組成物(a)の総量に対して30～90重量%である(1)～(5)のいずれかの樹脂組成物(a)。

(7) 下記の重合体(F)、(G)及び(H)を含む樹脂組成物(b)。

(F) 前記一般式(I)で示されるインデン又はインデン誘導体を1種またはそれ以上含む重合体

(G) ポリスチレン又はポリスチレン誘導体からなる重合体

(H) スチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な单量体からなる重合体の側鎖に、一般式(I)で示されるインデン又はインデン誘導体の少なくとも1種を含む重合体が結合した構造を有するグラフト重合体

(8) 重合体(F)、(G)及び(H)を含む樹脂組成物に、ジフェニルシリコーン(D)及び／又はフェノール系酸化防止剤(E)を添加した(7)の樹脂組成物(b)。

(9) 飽和吸水率は0.4%以下であり、200%延伸時の複屈折率は $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-6}$ の範囲にある(7)又は(8)の樹脂組成物(b)。

(10) 前記重合体(F)の重量平均分子量は、4000以上である(7)～(9)のいずれかの樹脂組成物(b)。

(11) 前記重合体(G)及び前記重合体(H)の重量平均分子量は、5000以上である(7)～(10)のいずれかの樹脂組成物(b)。

(12) 前記重合体(F)は、樹脂組成物(b)の総量に対して30～90重量%である(7)～(11)のいずれかの樹脂組成物(b)。

(13) 下記の重合体(I)及び(J)と、ジフェニルシリコーン(D)及びフェノール系酸化防止剤(E)を含む樹脂組成物(c)。

(I) 前記一般式(I)で示されるインデン又はインデン誘導体を1種またはそれ

以上含む重合体であり、側鎖に複素環構造を含有する重合体

(J) スチレン又はスチレン誘導体と、それらと共に重合可能な单量体とから成る重合体であり、側鎖にカルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基を含有する重合体

(14) 飽和吸水率は0.4%以下であり、200%延伸時の複屈折率は $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-5}$ の範囲にある(13)の樹脂組成物(c)。

(15) 重合体(I)中の複素環構造の含有量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.01~5mol%であり、重合体(J)中のカルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基の含有量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.01~5mol%である(13)又は(14)の樹脂組成物(c)。

(16) 複素環構造と、カルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基のモル比は、0.1~10.0である(13)~(15)のいずれかの樹脂組成物(c)。

(17) 重合体(I)は、樹脂組成物(c)の総量に対して30~90重量%である(13)~(16)のいずれかの樹脂組成物(c)。

(18) ジフェニルシリコーン(D)の添加量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.01~1.0重量%であり、フェノール系酸化防止剤(E)の添加量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.1~3.0重量%である(13)~(17)のいずれかの樹脂組成物(c)。

(19) (1)に記載の樹脂組成物(a)、(7)に記載の(b)、(13)に記載の樹脂組成物(c)の中から選ばれる樹脂組成物を成形して得られる成形材。

(20) (1)に記載の樹脂組成物(a)、(7)に記載の(b)、(13)に記載の樹脂組成物(c)の中から選ばれる樹脂組成物から得られるシート。

(21) (1)に記載の樹脂組成物(a)、(7)に記載の(b)、(13)に記載の樹脂組成物(c)の中から選ばれる樹脂組成物から得られるフィルム。

(22) (19)~(21)の成形材、シート又はフィルムを用いた光学用部品。

以下、本発明を詳細に説明する。

<1>本発明の樹脂組成物(a)

本発明の樹脂組成物(a)は、下記の重合体(A)、(B)及び／又は(C)

を含む樹脂組成物である。

(A) 上記一般式 (I) で示されるインデン又はインデン誘導体を 1 種またはそれ以上含む重合体

(B) ポリスチレン又はポリスチレン誘導体からなる重合体

(C) スチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な単量体からなる重合体

本発明の樹脂組成物 (a) において、上記重合体 (A) は、上記一般式 (I) で示されるインデン又はインデン誘導体を 1 種またはそれ以上含む重合体であれば特に制限はなく、いかなるものを用いてもよい。

上記重合体 (A) に用いられるインデン誘導体としては、上記一般式 (I) で示されるものが挙げられ、上記式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅、R₆は同一であつても異なっていても良く、水素原子；窒素原子、酸素原子又はケイ素原子を含有する 1 倍の炭化水素基；炭素数 1 ~ 6 のアルキル基；1 倍の芳香族系炭化水素基を示す。

窒素原子、酸素原子又はケイ素原子を含有する 1 倍の炭化水素基としては、例えば、ジメチルアミノエチル基、ジエチルアミノエチル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペントキシ基、ヘキソキシ基、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基等が挙げられる。

炭素数 1 ~ 6 のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、2-メチルブチル基、3-メチルブチル基、t-ペンチル基、n-ヘキシル基、2-メチルペンチル基、3-メチルペンチル基、4-メチルペンチル基、1-メチルペンチル基、2,2-ジメチルブチル基、2,3-ジメチルブチル基、2,4-ジメチルブチル基、3,3-ジメチルブチル基、3,4-ジメチルブチル基、4,4-ジメチルブチル基、2-エチルブチル基、1-エチルブチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

1 倍の芳香族系炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、ベンジル基等が挙げられる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。

X は水素原子、ハロゲン原子、アシル基、アルコキシ基またはニトリル基を示す。X におけるハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられ

§

る。

Xにおけるアシル基としては、ホルミル基、アセチル基、プロピオニル基、ブチリル基、イソブチリル基等が挙げられる。

Xにおけるアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペントキシ基、ヘキソキシ基等が挙げられる。

また、xは0または1～4の整数を示し、yは1～4の整数を示す。但し $x+y=4$ である。

重合体(A)に用いる单量体としては、上記インデン又はインデン誘導体単独で又は2種以上で用いることができる。

上記置換基を有するインデン誘導体として、核置換メチルインデン、核置換エチルインデン、核置換プロピルインデン、核置換ブチルインデン等の核置換アルキルインデン、核置換クロロインデン、核置換プロモインデン等が挙げられる。より具体的には、メチルインデン、 α -メチルインデン、 β -メチルインデン等が好ましく挙げられる。

樹脂組成物(a)に用いられる重合体(B)は、ポリスチレン又はポリスチレン誘導体からなる重合体である。本発明において、ポリスチレン又はポリスチレン誘導体からなる重合体(B)の製造に用いる单量体としては、例えば、スチレン、核置換アルキルスチレン、核置換芳香族スチレン、 α -置換アルキルスチレン、 β -置換アルキルスチレン、核置換アルコキシスチレン等を挙げることができる。

核置換アルキルスチレンとしては例えば、o-メチルスチレン、m-メチルスチレン、p-メチルスチレン、o-エチルスチレン、m-エチルスチレン、p-エチルスチレン、o-ブロビルスチレン、m-ブロビルスチレン、p-ブロビルスチレン、o-n-ブチルスチレン、m-n-ブチルスチレン、p-n-ブチルスチレン、o-イソブチルスチレン、m-イソブチルスチレン、p-イソブチルスチレン、o-t-ブチルスチレン、m-t-ブチルスチレン、p-t-ブチルスチレン、o-n-ベンチルスチレン、m-n-ベンチルスチレン、p-n-ベンチルスチレン、o-2-メチルブチルスチレン、m-2-メチルブチルスチレン、p-2-メチルブチルスチレン、o-3-メチルブチルスチレン、m-3-メチルブチルスチレン、p-3-メチルブチルスチレン、o-t-ベンチルスチレン、m-t-ベンチルスチレン、p-t-ベンチルスチレン、o-n-ヘキシルスチレン、m-n-ヘキシルスチレ

ン、*o-n*-ヘキシルスチレン、*o-2*-メチルベンチルスチレン、*m-2*-メチルベンチルスチレン、*p-2*-メチルベンチルスチレン、*o-3*-メチルベンチルスチレン、*m-3*-メチルベンチルスチレン、*p-3*-メチルベンチルスチレン、*o-1*-メチルベンチルスチレン、*m-1*-メチルベンチルスチレン、*p-1*-メチルベンチルスチレン、*o-2,2*-ジメチルブチルスチレン、*m-2,2*-ジメチルブチルスチレン、*p-2,2*-ジメチルブチルスチレン、*o-2,3*-ジメチルブチルスチレン、*m-2,3*-ジメチルブチルスチレン、*p-2,3*-ジメチルブチルスチレン、*o-2,4*-ジメチルブチルスチレン、*m-2,4*-ジメチルブチルスチレン、*p-2,4*-ジメチルブチルスチレン、*o-3,3*-ジメチルブチルスチレン、*m-3,3*-ジメチルブチルスチレン、*p-3,3*-ジメチルブチルスチレン、*o-3,4*-ジメチルブチルスチレン、*m-3,4*-ジメチルブチルスチレン、*p-3,4*-ジメチルブチルスチレン、*o-4,4*-ジメチルブチルスチレン、*m-4,4*-ジメチルブチルスチレン、*p-4,4*-ジメチルブチルスチレン、*o-2*-エチルブチルスチレン、*m-2*-エチルブチルスチレン、*p-2*-エチルブチルスチレン、*o-1*-エチルブチルスチレン、*m-1*-エチルブチルスチレン、*p-1*-エチルブチルスチレン、*o*-シクロヘキシルスチレン、*m*-シクロヘキシルスチレン、*p*-シクロヘキシルスチレン等を用いることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではい。これらの単独又は2種以上を用いることができる。

核置換芳香族スチレンとしては例えば、*o*-フェニルスチレン、*m*-フェニルスチレン、*p*-フェニルスチレン等を用いることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではい。

α -置換アルキルスチレンとしては例えば、 α -メチルスチレン、 α -エチルスチレン、 α -プロピルスチレン、 α -*n*-ブチルスチレン、 α -イソブチルスチレン、 α -*t*-ブチルスチレン、 α -*n*-ベンチルスチレン、 α -2-メチルブチルスチレン、 α -3-メチルブチルスチレン、 α -*t*-ブチルスチレン、 α -*t*-ベンチルスチレン、 α -*n*-ヘキシルスチレン、 α -2-メチルベンチルスチレン、 α -3-メチルベンチルスチレン、 α -1-メチルベンチルスチレン、 α -2,2-ジメチルブチルスチレン、 α -2,3-ジメチルブチルスチレン、 α -2,4-ジメチルブチルスチレン、 α -3,3-ジメチルブチルスチレン、 α -3,4-ジメチルブチルスチレン、 α -4,4-ジメチルブチルスチレン、 α -2-エチルブチルスチレン、 α -1-エチルブチルスチレン、 α -シクロヘキシ

ルスチレン等を用いることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではい。これらの単独又は2種以上を用いることができる。

β -置換アルキルスチレンとしては例えば、 β -メチルスチレン、 β -エチルスチレン、 β -プロピルスチレン、 β -n-ブチルスチレン、 β -イソブチルスチレン、 β -t-ブチルスチレン、 β -n-ベンチルスチレン、 β -2-メチルブチルスチレン、 β -3-メチルブチルスチレン、 β -t-ベンチルスチレン、 β -n-ヘキシルスチレン、 β -2-メチルベンチルスチレン、 β -3-メチルベンチルスチレン、 β -1-メチルベンチルスチレン、 β -2,2-ジメチルブチルスチレン、 β -2,3-ジメチルブチルスチレン、 β -2,4-ジメチルブチルスチレン、 β -3,3-ジメチルブチルスチレン、 β -3,4-ジメチルブチルスチレン、 β -4,4-ジメチルブチルスチレン、 β -2-エチルブチルスチレン、 β -1-エチルブチルスチレン、 β -シクロヘキシルスチレン等を用いることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではい。これらの単独又は2種以上を用いることができる。

核置換アルコキシスチレンとしては例えば、o-メトキシスチレン、m-メトキシスチレン、p-メトキシスチレン、o-エトキシスチレン、m-エトキシスチレン、p-エトキシスチレン、o-プロポキシスチレン、m-プロポキシスチレン、p-プロポキシスチレン、o-n-ブトキシスチレン、m-n-ブトキシスチレン、p-n-ブトキシスチレン、o-イソブトキシスチレン、m-イソブトキシスチレン、p-イソブトキシスチレン、o-t-ブトキシスチレン、m-t-ブトキシスチレン、p-t-ブトキシスチレン、o-n-ペントキシスチレン、m-n-ペントキシスチレン、p-n-ペントキシスチレン、o-2-メチルブトキシスチレン、m-2-メチルブトキシスチレン、p-2-メチルブトキシスチレン、o-3-メチルブトキシスチレン、m-3-メチルブトキシスチレン、p-3-メチルブトキシスチレン、o-t-ペントキシスチレン、m-t-ペントキシスチレン、p-t-ペントキシスチレン、o-n-ヘキソキシスチレン、m-n-ヘキソキシスチレン、p-n-ヘキソキシスチレン、o-2-メチルペントキシスチレン、m-2-メチルペントキシスチレン、p-2-メチルペントキシスチレン、o-3-メチルペントキシスチレン、m-3-メチルペントキシスチレン、p-3-メチルペントキシスチレン、o-1-メチルペントキシスチレン、m-1-メチルペントキシスチレン、p-1-メチルペントキシスチレン、o-2,2-ジメチルブトキシスチレン、m-2,2-ジメチルブトキシスチレン、p-

2,2-ジメチルブトキシスチレン、o-2,3-ジメチルブトキシスチレン、m-2,3-ジメチルブトキシスチレン、p-2,3-ジメチルブトキシスチレン、o-2,4-ジメチルブトキシスチレン、m-2,4-ジメチルブトキシスチレン、p-2,4-ジメチルブトキシスチレン、o-3,3-ジメチルブトキシスチレン、m-3,3-ジメチルブトキシスチレン、p-3,3-ジメチルブトキシスチレン、-o=3,4-ジメチルブトキシスチレン、m-3,4-ジメチルブトキシスチレン、p-3,4-ジメチルブトキシスチレン、o-4,4-ジメチルブトキシスチレン、m-4,4-ジメチルブトキシスチレン、p-4,4-ジメチルブトキシスチレン、o-2-エチルブトキシスチレン、m-2-エチルブトキシスチレン、p-2-エチルブトキシスチレン、o-1-エチルブトキシスチレン、m-1-エチルブトキシスチレン、p-1-エチルブトキシスチレン、o-シクロヘキソキシスチレン、m-シクロヘキソキシスチレン、p-シクロヘキソキシスチレン、o-フェノキシスチレン、m-フェノキシスチレン、p-フェノキシスチレン等を用いることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではい。これらの単独又は2種以上を用いることができる。

樹脂組成物(a)に用いられる重合体(C)はスチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な单量体からなる重合体である。重合体(C)に用いられるスチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な单量体としては、例えば、スチレン、核置換アルキルスチレン、核置換芳香族スチレン、 α -置換アルキルスチレン、 β -置換アルキルスチレン、核置換アルコキシスチレン、アルキルビニルエーテル、芳香族ビニルエーテル、イソブテン、ジイソブチレン、C1~C8の(メタ)アクリルエステル等を挙げることができる。これらの単独又は2種以上を用いることができる。

核置換アルキルスチレン、核置換芳香族スチレン、 α -置換アルキルスチレン、 β -置換アルキルスチレンおよび核置換アルコキシスチレンは、重合体(B)で用いられる单量体と同様のものが挙げられる。

アルキルビニルエーテルのアルキルには特に制限はなく、いかなるものを用いてもよい。例えば、メチル、エチル、プロピル、n-ブチル、イソブチル、t-ブチル、n-ペンチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル、t-ペンチル、n-ヘキシル、2-メチルペンチル、3-メチルペンチル、4-メチルペンチル、1-メチルペンチル、

2,2-ジメチルブチル、2,3-ジメチルブチル、2,4-ジメチルブチル、3,3-ジメチルブチル、3,4-ジメチルブチル、4,4-ジメチルブチル、2-エチルブチル、1-エチルブチル、シクロヘキシル等のアルキルを有するアルキルビニルエーテルを挙げることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を用いることもできる。

芳香族ビニルエーテルとしては例えば、フェニルビニルエーテル等を挙げることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。

C1～C8の(メタ)アクリルエステルとしては、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、プロピル(メタ)アクリレート、n-ブチル(メタ)アクリレート、i-ブチル(メタ)アクリレート、n-ペンチル(メタ)アクリレート、n-ヘキシル(メタ)アクリレート、n-ヘプチル(メタ)アクリレート、n-オクチル(メタ)アクリレート、2-エチルヘキシル(メタ)アクリレート等を挙げることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を用いることもできる。

重合体(C)に用いられる上記スチレン、核置換アルキルスチレン、 α -置換アルキルスチレン、 β -置換アルキルスチレン、核置換アルコキシスチレン、アルキルビニルエーテル、芳香族ビニルエーテル、イソブテン、ジイソブチレン、C1～C8の(メタ)アクリルエステル等は、任意の部位に、アルキル基、ベンゼン環、ハロゲン原子等の置換基を有していても良い。

本発明の樹脂組成物(a)において上記(A)、(B)、(C)の重合体の製造方法には特に制限はなく、通常の方法により製造することができる。例えば、カチオン重合、アニオン重合、ラジカル重合、リビングラジカル重合等によって製造することができる。上記重合方法は用いる触媒によって選択可能である。

カチオン重合に用いる触媒には特に制限はなく、公知の触媒を用いることができる。例えば、塩化アルミニウム、塩化鉄、塩化錫、塩化亜鉛、塩化ストロンチウム、塩化スカンジウム等のルイス酸、硫酸、パラトルエンスルホン酸、塩酸、硝酸等のプロトン酸、塩化アルキルアルミニウム等を用いることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を用いることもできる。

アニオン重合に用いる触媒には特に制限はなく、公知の触媒を用いることができる。例えば、ブチルリチウム等を用いることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。

ラジカル重合に用いる触媒には特に制限はなく、公知の触媒を用いることができる。例えば、ベンゾイルパーオキサイド、ラウリルパーオキサイド、メチルエチルケトンパーオキサイド等の過酸化物を用いることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を用いることもできる。

リビングラジカル重合に用いる触媒には特に制限はなく、公知の触媒を用いることができる。例えば、ベンゾイルパーオキシドとニトロキシド化合物の併用系、Ru錯体／アルコキシアルミニウム併用系等を挙げることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を用いることもできる。

重合方法は、通常の溶液重合、懸濁重合、塊状重合等の方法で合成することができる。特に、溶液重合方法が最も好ましい。

用いる溶媒には特に制限はなく、公知の溶媒を用いることができる。例えば、クロロメタン、ジクロロメタン、トリクロロメタン、テトラクロロメタン、クロロエタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロエチレン、ジクロロエチレン、ニトロベンゼン、ジニトロベンゼン、トリニトロベンゼン、メチルベンゼン、ジメチルベンゼン、トリメチルベンゼン、エチルベンゼン、ジエチルベンゼン、トリエチルベンゼン等のアルキルベンゼン類、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類、MMA、酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル類を挙げることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を用いることもできる。

重合温度は、-100°C～180°C間での範囲で行うことが好ましい。-100°C未満で重合反応を行うと反応性が低下し、充分な高分子量体を得ることが難しい。180°Cを超える温度では、成長末端の反応性が高すぎるため、連鎖移動反応が著しく多量に生起するために高分子量体が得られにくくなることがある。

樹脂組成物（a）においては、重合体（A）の重量平均分子量は80000未満であることが好ましく、40000未満であることがより好ましい。重合体（A）の重量平均分子量が80000未満であると樹脂組成物（a）の流動性、透明性が低下する傾向がある。

重合体（A）の重量平均分子量を上記範囲とするには、重合の際に用いる触媒の種類や量を選択したり、重合禁止剤を用いたり、連鎖移動剤を用いたり、重合温度を調節するなどにより調製できる。

また、重合体（B）及び／又は重合体（C）の重量平均分子量が50000以上であることが好ましく、100000以上であることがより好ましい。重合体（B）及び／又は重合体（C）の重量平均分子量が50000未満であると成形材の強度が低下する傾向がある。

重合体（B）及び／又は重合体（C）の重量平均分子量を上記範囲とするには、重合の際に用いる触媒の種類や量を選択したり、重合禁止剤を用いたり、用いる触媒の種類や量を選択したり、重合禁止剤を用いたり、連鎖移動剤を用いたり、重合温度を調節するなどにより調製できる。

重量平均分子量は、テトラヒドロフラン溶液にてGPC測定により求めることができる。

上記方法で得られた重合体（A）、（B）、（C）は、通常の方法で単離して樹脂組成物（a）に用いることが出来る。

本発明においては、重合体（A）は、樹脂組成物（a）の総量に対して30～90重量%が好ましく、さらには50～90重量%であることが好ましく、60～85重量%であることがより好ましい。重合体（A）が、樹脂組成物（a）の総量に対して30重量%未満、又は90重量%を越えると複屈折率の絶対値が増大する傾向がある。

また樹脂組成物（a）は、ジフェニルシリコーン（D）及び／又はフェノール系酸化防止剤（E）を添加されることも好ましい。

本発明の樹脂組成物（a）に用いるジフェニルシリコーン（D）は、粘度は特に制限はなく、いかなる粘度のものを用いてもよい。ジフェニルシリコーン（D）の添加量は、樹脂組成物（a）総量に対して0.01～1.0重量%の範

囲で用いることが好ましい。さらには0.05～0.8重量%の範囲がより好ましい。0.01重量%より少ないと、射出成形時の金型からの離型性に対して効果が低下する傾向があり、1.0重量%を越えると耐熱性が低下する傾向がある。

本発明に用いるフェノール系酸化防止剤（E）としては、例えば、ジブチルヒドロキシトルエン、アルキル化フェノール、4,4'-チオビス（6-t-ブチル-3-メチルフェノール）、4,4'-ブチリデンビス（6-t-ブチル-3-メチルフェノール）、2,2''-メチレンビス（4-メチル-6-t-ブチルフェノール）、2,2''-メチレンビス（4-エチル-6-t-ブチルフェノール）、2,6-ジ-t-ブチル-4-エチルフェノール、1,1,-トリス（2-メチル-4-ヒドロキシ-5-t-ブチルフェニル）ブタン、n-オクタデシル-3-（4-ヒドロキシ-3,5-t-ジブチルフェニル）プロピオネート、テトラキス（メチレン-3-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、ジラウリルチオジプロピオネート、ジステアリルチオジプロピオネート、ジミリスチルチオジプロピオネート等を用いることができるが、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を組み合わせて用いることができる。フェノール系酸化防止剤（E）の添加量は、樹脂組成物（a）総量に対して0.1～3.0重量%であることが好ましく、さらには0.5～2.0重量%の範囲がより好ましい。0.1重量%より少ないと色相の変化を抑制する効果が少なく、3.0重量%を越えると樹脂の透明性及び耐熱性が低下する傾向がある。

本発明における重合体（A）、（B）及び／又は（C）、ジフェニルシリコン（D）とフェノール系酸化防止剤（E）の混合方法は、特に制限はなく、各重合体及びジフェニルシリコン及びフェノール系酸化防止剤を所定量を秤取し、これらを溶融混練することによって製造することができるし、各々の重合体、ジフェニルシリコン及びフェノール系酸化防止剤をトルエン、T H F、N M P等の溶媒に溶解した後、溶媒を除去することによっても製造することができる。

上記のようにして得られる本発明の樹脂組成物（a）は、飽和吸水率が0.4%以下であり、200%延伸時の複屈折率が $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-6}$ の範囲であることが好ましい。より好ましい飽和吸水率は0.2%以下であり、より好ましい200%延伸時の複屈折率は $-1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-6}$ である。

飽和吸水率が0.4%を超えると吸水時の屈折率変化が大きくなり好ましくな

い。また、200%延伸時の複屈折率が $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-6}$ の範囲をはずれると直線偏光がだ円偏光に大きく変化することがあるため好ましくない。

飽和吸水率を上記範囲とするためには、重合体(A)の樹脂組成物(a)全体に対する割合を30~90重量%にすればよい。

200%延伸時の複屈折率を上記範囲とするためには、重合体(A)の樹脂組成物(a)全体に対する割合を30~90重量%にすればよい。

本発明における飽和吸水率(%)は、70°Cの温水中に試験片を浸漬し、吸水率が飽和に達した時点の吸水率を測定することにより算出することができる。

「吸水が飽和に達したとき」とは70°C温水中にそれ以上の時間放置しても吸水率が変化しなくなった状態のときである。

また、複屈折率は、得られた成形材をそのガラス転移温度より5°C低い温度で200%延伸したものの複屈折率を、例えば、エリブソメータAEP-100型(島津製作所製)を用いて測定できる。測定条件は、温度：25°C、レーザ光波長：632.8 nmである。なお、成形材のガラス転移温度の測定は以下のように求めることが出来る。ガラス転移温度の測定は、DSC(示差走査熱量測定)によって、測定することができる。DSCの測定は、昇温速度10°C/minの条件で行う。

<2>本発明の樹脂組成物(b)

本発明の樹脂組成物(b)は、下記の重合体(F)、(G)及び(H)を含む樹脂組成物である。

(F) 前記一般式(I)で示されるインデン又はインデン誘導体を1種またはそれ以上含む重合体

(G) ポリスチレン又はポリスチレン誘導体からなる重合体

(H) スチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な单量体からなる重合体の側鎖に、一般式(I)で示されるインデン又はインデン誘導体の少なくとも1種を含む重合体が結合した構造を有するグラフト重合体

樹脂組成物(b)に用いられる重合体(F)は、樹脂組成物(a)に用いられる重合体(A)と同様のインデン系单量体を用いて、同様に製造することができ

るが、重合体（F）の重量平均分子量は4000以上であることが好ましい。より好ましくは、8000以上である。重合体（F）の重量平均分子量が4000未満であると、耐熱性が低下する傾向がある。

重合体（F）の重量平均分子量を上記範囲とするには、重合の際に用いる触媒の種類や量を選択したり、重合禁止剤を用いたり、連鎖移動剤を用いたり、重合温度を調節するなどにより調製できる。

また、樹脂組成物（b）に用いられる重合体（G）は、樹脂組成物（a）に用いられる重合体（B）と同様のスチレン系单量体を用いて、同様に製造することができる。

樹脂組成物（b）に用いられるグラフト重合体（H）は、スチレン又はスチレン誘導体からなる重合体の側鎖に、一般式（I）で表されるインデン又はインデン誘導体を1種またはそれ以上含む重合体が結合した構造を有する重合体である。即ち、グラフト重合体（H）は、スチレン又はスチレン誘導体からなる重合体を主鎖部とし、一般式（I）で表されるインデン又はインデン誘導体を1種またはそれ以上含む重合体を分岐部としたものである。

グラフト重合体（H）の主鎖部の構成モノマーに用いられるスチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な单量体として、例えば、スチレン、核置換アルキルスチレン、核置換芳香族スチレン、 α -置換アルキルスチレン、 β -置換アルキルスチレン、核置換アルコキシスチレン、アルキルビニルエーテル、芳香族ビニルエーテル、イソブテン、ジイソブチレン、C1～C8の（メタ）アクリルエステル等を挙げることができる。

核置換アルキルスチレン、核置換芳香族スチレン、 α -置換アルキルスチレン、 β -置換アルキルスチレンおよび核置換アルコキシスチレンは、樹脂組成物（a）の重合体（B）で用いられる单量体と同様のものが挙げられる。また、アルキルビニルエーテル、芳香族ビニルエーテル、C1～C8の（メタ）アクリルエステルは、樹脂組成物（a）の重合体（C）で用いられる单量体と同様のものがあげられる。

グラフト重合体（H）に用いられる上記スチレン、核置換アルキルスチレン、 α -置換アルキルスチレン、 β -置換アルキルスチレン、核置換アルコキシスチレ

ン、アルキルビニルエーテル、芳香族ビニルエーテル、イソブテン、ジイソブチレン、C1～C8の(メタ)アクリルエステル等は、任意の部位に、アルキル基、ベンゼン環、ハロゲン原子等の置換基を有していても良い。

グラフト重合体(H)の分岐部の構成モノマーとして用いられるインデン又はインデン誘導体は、一般式(I)で示される上述したものが挙げられる。

本発明の樹脂組成物(b)において、上記グラフト重合体(H)の製造方法としては、通常のグラフト重合体の製造方法を挙げることができるが、例えば以下の方法が挙げられる。

スチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な単量体を予めラジカル重合等により製造したものを、トルエン、THF、NMP等に溶解し、更に一般式(I)で示されるインデン又はインデン誘導体を溶解した後、触媒として塩化錫、塩化アルミ等のルイス酸、助触媒として2,6-ビス(t-ブチル)ピリジン等を添加してカチオン重合する方法が挙げられる。

また、グラフト重合体(H)の主鎖部の重量平均分子量は、10000以上であることが好ましい。

また、重合体(G)及びグラフト重合体(H)の重量平均分子量が50000以上であることが好ましく、100000以上であることがより好ましい。重合体(G)及びグラフト重合体(H)の重量平均分子量が50000未満であると成形材の強度が低下する傾向がある。

重合体(G)及びグラフト重合体(H)の重量平均分子量を上記範囲とするには、重合の際に用いる触媒の種類や量を選択したり、重合禁止剤を用いたり、連載移動剤を用いたり、重合温度を調節するなどにより調製できる。

また、本発明の樹脂組成物(b)はジフェニルシリコーン及び/又はフェノール系酸化防止剤を添加されることも好ましい。

本発明の樹脂組成物(b)に用いるジフェニルシリコーン(D)は、樹脂組成物(a)に用いるものと同様に、粘度は特に制限はなく、いかなる粘度のものを用いてもよい。ジフェニルシリコーン(D)の添加量は、樹脂組成物(b)総量に対して0.01～1.0重量%の範囲で用いることが好ましい。さらには0.05～0.8重量%の範囲がより好ましい。0.01重量%より少ないと、射出

成形時の金型からの離型性に対して効果が低下する傾向があり、1.0重量%を越えると耐熱性が低下する傾向がある。

本発明の樹脂組成物（b）に用いるフェノール系酸化防止剤としては、樹脂組成物（a）に用いるフェノール系酸化防止剤（E）が挙げられる。添加量は特に制限はないが、樹脂組成物（b）総量に対して0.1～3.0重量%で用いるのが好ましく、0.5～2.0重量%の範囲で用いるのがより好ましい。フェノール系酸化防止剤（E）の添加量が0.1重量%未満であると、色相の変化を抑制する効果が少ない傾向があり、また3.0重量%を超えると樹脂の透明性及び耐熱性が低下する傾向がある。

上記方法で得られた重合体（F）、（G）、（H）、ジフェニルシリコーン（D）とフェノール系酸化防止剤（E）の混合方法は、特に制限はなく、上記樹脂組成物（a）と同様にすればよい。

本発明の樹脂組成物（b）において、重合体（F）が、樹脂組成物（b）の総量に対して30～90重量%であることが好ましく、さらには50～90重量%であることが好ましく、60～85重量%であることがより好ましい。重合体（F）が、樹脂組成物（b）の総量に対して30重量%未満、又は90重量%を越えると複屈折率の絶対値が増大する傾向がある。

上記のようにして得られる本発明の樹脂組成物（b）は、飽和吸水率が0.4%以下であり、200%延伸時の複屈折率が $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-6}$ の範囲であることが好ましい。より好ましい飽和吸水率は0.2%以下であり、より好ましい200%延伸時の複屈折率は $-1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-6}$ である。

飽和吸水率が0.4%を超えると吸水時の屈折率変化が大きくなり好ましくない。また、200%延伸時の複屈折率が $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-6}$ の範囲をはずれると直線偏光がだ円偏光に大きく変化することがあるため好ましくない。

飽和吸水率を上記範囲とするためには、重合体（F）が、樹脂組成物全体に対する割合を30～90重量%とすればよい。

200%延伸時の複屈折率を上記範囲とするためには、重合体（F）の樹脂組成物全体に対する割合を30～90重量%にすればよい。

<3>本発明の樹脂組成物(c)

本発明の樹脂組成物(c)は、下記の重合体(I)及び(J)と、ジフェニルシリコーン(D)及びフェノール系酸化防止剤(E)を含む樹脂組成物である。

(I) 前記一般式(I)で示されるインデン又はインデン誘導体を1種またはそれ以上含む重合体であり、側鎖に複素環構造を含有する重合体

(J) スチレン又はスチレン誘導体と、それらと共に重合可能な単量体とから成る重合体であり、側鎖にカルボキシル基及び/又はフェノール性水酸基を含有する重合体

重合体(I)に用いられるインデン系単量体は、樹脂組成物(a)に用いられる重合体(A)と同様のインデン系単量体を用いることができる。

重合体(I)の側鎖へ複素環構造を導入する方法は、特に制限はなく、以下の方法が挙げられる。

①上記インデンまたはインデン誘導体から成り、官能基を有する重合体を製造した後に、複素環構造を有する化合物を反応させることによって製造する。

具体的には、重合体(I)の側鎖に複素環構造を導入する場合、例えば、上記インデンまたはインデン誘導体と、無水マレイン酸等の酸無水部分を有するビニル系単量体との重合体を合成することにより、官能基として酸無水部分を有する共重合体を得ることができる。そして、アミノ基と複素環構造を有する化合物であるアミノピリジン等のアミノ基で無水マレイン酸の酸無水部分を開環させることにより、複素環構造を導入することができる。

②反応性を有する複素環構造を有する単量体を、インデンまたはインデン誘導体と共に重合可能な単量体と通常の方法により共重合することによって製造する。

上記②で用いる反応性を有する複素環構造を有する単量体としては、例えば、重合可能な反応基を有するピリジン、イミダゾリン、ピラジン、ピリミジン、キノリン、インドリジン、アクリジン、フラン、チオフェン、オキサゾール等；具体的には、ビニルピリジン、ピリジルビニルエーテル、ピリジルマレイミド等を用いることができるが、これらに制限されるものではない。また、これらは1種またはそれ以上で用いることもできる。

本発明の樹脂組成物(c)において、上記重合体(J)は、スチレン又はスチ

レン誘導体と共に重合可能な单量体からなり、側鎖にカルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基を含有する。

重合体（J）に用いるスチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な单量体としては、例えば、核置換アルキルスチレン、核置換芳香族スチレン、 α -置換アルキルスチレン、 β -置換アルキルスチレン、核置換アルコキシスチレン、アルキルビニルエーテル、芳香族ビニルエーテル等が挙げられ、これらは樹脂組成物（a）の重合体（B）で用いられるスチレン系单量体と同様の单量体が挙げられる。

また、重合体（J）に用いられるスチレン誘導体と共に重合可能な单量体としては、例えば、核置換アルキルスチレン、核置換芳香族スチレン、 α -置換アルキルスチレン、 β -置換アルキルスチレン、核置換アルコキシスチレン、アルキルビニルエーテル、芳香族ビニルエーテル、イソブテン、ジイソブチレン、C1～C8の（メタ）アクリルエステル等が挙げられ、具体的には、樹脂組成物（c）の重合体（C）に用いられるものと同様の单量体が挙げられる。

重合体（J）の側鎖へカルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基を導入する方法は、特に制限はなく、以下の方法が挙げられる。

①上記スチレンまたはスチレン誘導体を1種またはそれ以上含み、官能基を有する重合体を製造した後に、カルボキシル基又はフェノール性水酸基を有する化合物を反応させることによって製造する。

具体的には、重合体（J）の側鎖にカルボキシル基を導入する場合、例えば、上記スチレンまたはスチレン誘導体と、2-ヒドロキシリルメタクリレート（HEMA）等のアルコール性水酸基を有するビニル系单量体との共重合体を合成することにより、官能基としてアルコール性水酸基を有する共重合体を得ることができる。そして、無水トリメリット酸等の酸無水物をHEMAのアルコール性水酸基に開環付加させることによりカルボキシル基を導入できる。

また、重合体（J）の側鎖にフェノール性水酸基を導入する場合、上記スチレンまたはスチレン誘導体と、無水マレイン酸等の酸無水部分を有するビニル系单量体との重合体を合成することにより、官能基として酸無水部分を有する重合体を得ることができる。そして、アミノフェノール等のアミノ基とフェノール性水酸基を有する化合物のアミノ基で無水マレイン酸の酸無水部分を開環させること

により、フェノール性水酸基を導入することができる。

②反応性を有するカルボキシル基又はフェノール性水酸基を有する単量体を、上記スチレン又はスチレン誘導体と通常の方法により共重合することによって製造する。

また、上記②で用いる反応性を有するカルボキシル基又はフェノール性水酸基を有する単量体としては、例えば、メタクリル酸、アクリル酸、マレイン酸、ビニルフェノール、ビニル安息香酸等を用いることができるが、これらに制限されるものではない。また、これらは1種またはそれ以上で用いることもできる。

本発明の樹脂組成物(c)において、重合体(I)中の複素環構造の含有量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.01～5mol%であることが好ましく、より好ましくは、0.02～2mol%である。重合体(I)中の複素環構造の含有量が0.01mol%未満であると、樹脂組成物(c)の透明性は低下する傾向があり、逆に5mol%を越えると、樹脂組成物の吸水率が増大する傾向がある。

重合体(J)中のカルボキシル基及び/又はフェノール性水酸基の含有量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.01～5mol%であることが好ましく、より好ましくは0.02～2mol%である。重合体(J)中のカルボキシル基及び/又はフェノール性水酸基の含有量が0.01mol%未満であると、樹脂組成物(c)の透明性は低下する傾向があり、逆に5mol%を越えると、樹脂組成物(c)の吸水率が増大する傾向がある。

本発明において、複素環構造と、カルボキシル基及び/又はフェノール性水酸基とのモル比は、0.1～10.0であることが好ましい。この比率が0.1未満であるか、10.0を越えると、樹脂組成物(c)の透明性が低下する傾向がある。

本発明において上記(I)、(J)の重合体の製造方法には特に制限はなく、上述の単量体を用いて、通常の方法により製造することが出来る。

本発明の樹脂組成物(c)に用いるジフェニルシリコーン(D)は、樹脂組成物(a)に用いるものと同様に、粘度は特に制限はなく、いかなる粘度のものを用いてもよい。ジフェニルシリコーン(D)の添加量は、樹脂組成物(c)総量に対して0.01～1.0重量%の範囲で用いることが好ましい。さらには0.

0.5～0.8重量%の範囲がより好ましい。0.01重量%より少ないと、射出成形時の金型からの離型性に対して効果が低下する傾向があり、1.0重量%を越えると耐熱性が低下する傾向がある。

本発明の樹脂組成物(c)に用いるフェノール系酸化防止剤としては、樹脂組成物(a)に用いるフェノール系酸化防止剤(E)が挙げられる。添加量は特に制限はないが、樹脂組成物(c)総量に対して0.1～3.0重量%で用いるのが好ましく、0.5～2.0重量%の範囲で用いるのがより好ましい。フェノール系酸化防止剤(E)の添加量が0.1重量%未満であると、色相の変化を抑制する効果が少ない傾向があり、また3.0重量%を超えると樹脂の透明性及び耐熱性が低下する傾向がある。

上記方法で得られた重合体(I)、(J)、ジフェニルシリコーン(D)とフェノール系酸化防止剤(E)の混合方法は、特に制限はなく、上記樹脂組成物(a)と同様にすればよい。

本発明の樹脂組成物(c)において、重合体(I)が、樹脂組成物(c)の総量に対して30～90重量%が好ましく、さらには50～90重量%であることが好ましく、60～85重量%であることがより好ましい。重合体(I)が、樹脂組成物(c)の総量に対して30重量%未満、又は90重量%を超えると複屈折率の絶対値が増大する傾向がある。

上記のようにして得られる本発明の樹脂組成物(c)は、飽和吸水率が0.4%以下であり、200%延伸時の複屈折率が $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-6}$ の範囲であることが好ましい。より好ましい飽和吸水率は0.2%以下であり、より好ましい200%延伸時の複屈折率は $-1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-6}$ である。

飽和吸水率が0.4%を超えると吸水時の屈折率の変化が大きくなり好ましくない。また、200%延伸時の複屈折率が $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-6}$ の範囲をはずれると直線偏光が円偏光に大きく変化することがあるため好ましくない。

飽和吸水率を上記範囲とするためには、重合体(I)中のカルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基の含有量と、重合体(J)中の複素環構造及び／又はアルキルアミノ基の含有量が各々0.005～5mol%を満たすようにすればよい。

200%延伸時の複屈折率を上記範囲とするためには、重合体(I)が樹脂組

成物（c）の総量に対する割合を30～90重量%にすればよい。

<4>本発明の成形材

本発明に係わる上記の樹脂組成物（a）、樹脂組成物（b）、樹脂組成物（c）は、成形材、シート又はフィルムに加工することができる。本発明において、これらの樹脂組成物を成形材とする際に、必要に応じて任意の成分を加えることができる。

本発明の樹脂組成物は、低誘電率、低吸湿率、高耐熱性等の特性を満足できる半導体関連材料、または光学用部品、更には、塗料、感光性材料、接着剤、汚水処理剤、重金属捕集剤、イオン交換樹脂、帯電防止剤、酸化防止剤、防曇剤、防錆剤、防染剤、殺菌剤、防虫剤、医用材料、凝集剤、界面活性剤、潤滑剤、個体燃料用バインダー、導電処理剤等への適用も可能である。

本発明の成形材を用いた光学用部品としては、CD用ピックアップレンズ、DVD用ピックアップレンズ、FAX用レンズ、LBP用レンズ、オリゴンミラー、プリズム等が挙げられる。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明を実施例により更に具体的に説明するが、本発明はこれらにより制限されるものではない。

なお、実施例中にて用いた評価方法は以下の通りである。

(1) 重量平均分子量

合成した重合体の分子量は、テトラヒドロフラン溶液にてGPC測定により求めた。

(2) 流動性(MI)

樹脂組成物の流動性は、220°C、荷重5kgfでのメルトフローレートを測定することにより求めた。

(3) 飽和吸水率

サンプルの吸水率は、70°Cの温水中にサンプルを浸漬し、吸水率が飽和に達

した時点の吸水率を測定した。表1中の吸水率はその飽和吸水率を示す。

(4) 耐熱性 (Tg)

耐熱性の測定は、DSC(示差走査熱量測定)によって、ガラス転移温度を測定することで評価した。DSCの測定は、昇温速度10°C/minの条件で行った。

(5) 比誘電率

ヒューレットパッカード社製 プレジションLCRメータ 4284A型を用いて、20KV、1KHz、25°Cの条件で測定した。

(6) 曲げ強度

試験片の曲げ強度は、島津製作所(株)製 AGS-1000Gを用いて行った。試験は室温にて、テストスピード0.5mm/min、スパン20mm、試験片幅10mmの条件で行った。

(7) 透過率

作成サンプルの透過率は、日本分光製V-570を用いて、25°Cにて測定した。測定波長は400~800nmの範囲にて測定した透過率を全光線透過率とした。

(8) 複屈折率

得られた成形材をそのガラス転移温度の5°C低い温度で150%延伸したものの複屈折を測定した。測定機器は、島津製作所製エリプソメータAEP-100型を用いて、25°Cにて測定した。レーザ光波長は632.8nmにて行った。

(9) 色相変化

樹脂を射出成形機中に250°Cにて30分間滞留した後、射出成形し、得られた成型品の色相変化を分光色度計(サカタインク社製、マクベスcolor-eye7000A)にて測定した。

(10) 離型性

射出成形時の離型性は、実際に樹脂を射出成形し、金型から離型視多彩の樹脂の表面状態及び破損の有無を目視で確認した。

実施例1

インデン 10.0 g 及びトルエン 30.0 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、25°C で FeCl₃ 0.05 g を添加し、12 時間反応させた。その後、この反応混合液にメタノール 0.05 g を添加した後、攪拌し均一溶液を得た。得られた均一溶液を 100 g のメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿 9.7 g を得た。この白色沈殿を減圧下で乾燥し、重合体 (A) を得た。この重合体の重量平均分子量は 2200 であった。

スチレン 20.0 g、ベンゾイルバーオキサイド 0.1 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、蒸留水 60 g、磷酸カルシウム 0.01 g を添加し、70°C で攪拌しながら 12 時間反応させた。得られた粒子状の重合体を単離し塩酸で洗浄した後、50°C で約 2 時間乾燥して、重合体 (B) を得た。得られた重合体の重量平均分子量は 200000 であった。

重合体 (A) 6.0 g と重合体 (B) 4.0 g をトルエン 20 g に溶解させ、約 300 g のメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を 40°C で 6 時間乾燥させ、目的の樹脂組成物の白色沈殿を得た。この樹脂組成物を溶融プレスすることによって厚さ 2 mm の成形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表 1 に示す。

実施例 2

インデン 8.0 g、4-メチルスチレン 2.0 g 及び塩化メチレン 30.0 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、-40°C で 0.05 g の FeCl₃ を添加し、12 時間反応させた。その後、室温で反応混合液にメタノール 0.05 g を添加した後、攪拌し均一溶液を得た。得られた均一溶液を 100 g のメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿 9.8 g を得た。この白色沈殿を減圧下に乾燥し重合体 (A) を得た。この重合体の重量平均分子量は 15000 であった。

スチレン 20.0 g、ベンゾイルバーオキサイド 0.1 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、蒸留水 60 g、磷酸カルシウム 0.01 g を添加し、70°C で、攪拌しながら 12 時間反応させた。所定時間反応させた後、粒子状の重合体を単離し塩酸で洗浄した後、50°C で約 2 時間乾燥して、重

合体（B）を得た。得られた重合体の重量平均分子量は200000であった。

スチレン14.0g、4-メチルスチレン5.0g、アクリル酸ブチル1.0g、ベンゾイルバーオキサイド0.1gを100mLのフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、蒸留水60g、磷酸カルシウム0.01gを添加し、70°Cで、攪拌しながら12時間反応させた。所定時間反応させた。得られた粒子状の重合体を単離し塩酸で洗浄した後、50°Cで約2時間乾燥して、重合体（C）を得た。得られた重合体の重量平均分子量は240000であった。

重合体（A）6.0g、重合体（B）1.5g及び重合体（C）2.5gをトルエン20gに溶解させ、約300gのメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を40°Cで6時間乾燥させ目的の樹脂混合物の白色沈殿を得た。この樹脂混合物を溶融プレスすることによって厚さ2mmの成形材を作製し、試験片とした。得られた試験片を実施例1と同様の方法で評価した結果を表1に示す。

実施例3

インデン10.0g及びトルエン30.0gを100mLフラスコ内に投入し、25°CでFeCl₃0.05gを添加し、12時間反応させた。その後、この反応混合液にメタノール0.05gを添加した後、攪拌し均一溶液を得た。得られた均一溶液を100gのメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿9.7gを得た。この白色沈殿を減圧下で乾燥し、重合体（A）を得た。この重合体の重量平均分子量は2200であった。

スチレン20.0g、ベンゾイルバーオキサイド0.1gを100mLのフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、蒸留水60g、磷酸カルシウム0.01gを添加し、70°Cで攪拌しながら12時間反応させた。得られた粒子状の重合体を単離し塩酸で洗浄した後、50°Cで約2時間乾燥して、重合体（B）を得た。得られた重合体の重量平均分子量は200000であった。

重合体（A）6.0gと重合体（B）4.0g及び粘度500cSのジフェニルシリコーン（信越化学製）0.01gとn-オクタデシル-3-(4-ヒドロキシ3,5-tジブチルフェニル)プロピオネート0.05gをトルエン20gに溶解させ、約3

0.0 g のメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を 40 °C で 6 時間乾燥させ、目的の樹脂組成物を得た。この樹脂組成物を溶融プレスすることによって厚さ 2 mm の成形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表 1 に示す。

実施例 4

インテン 8.0 g、4-メチルスチレン 2.0 g 及び塩化メチレン 30.0 g を 100 mL フラスコ内に投入し、-40 °C で FeCl₃ 0.05 g を添加し、12 時間反応させた。その後、この反応混合液にメタノール 0.05 g を添加した後、攪拌し均一溶液を得た。得られた均一溶液を 100 g のメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿 9.8 g を得た。この白色沈殿を減圧下で乾燥し、重合体 (A) を得た。この重合体の重量平均分子量は 15000 であった。

スチレン 20.0 g、ベンゾイルバーオキサイド 0.1 g を 100 mL のフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、蒸留水 60 g、磷酸カルシウム 0.01 g を添加し、70 °C で攪拌しながら 12 時間反応させた。得られた粒子状の重合体を単離し塩酸で洗浄した後、50 °C にて約 2 時間乾燥して、重合体 (B) を得た。得られた重合体の重量平均分子量は 200000 であった。

スチレン 14.0 g、4-メチルスチレン 5.0 g、アクリル酸ブチル 1.0 g、ベンゾイルバーオキサイド 0.1 g を 100 mL のフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、蒸留水 60 g、磷酸カルシウム 0.01 g を添加し、70 °C で攪拌しながら 12 時間反応させた。得られた粒子状の重合体を単離し塩酸で洗浄した後、50 °C にて約 2 時間乾燥して、重合体 (B) を得た。得られた重合体の重量平均分子量は 240000 であった。

重合体 (A) 6.0 g と重合体 (B) 1.5 g 及び重合体 (C) 2.5 g 及び粘度 500 CS のジフェニルシリコーン 0.01 g と n-オクタデシル-3-(4-ヒドロキシ 3,5-t-ジブチルフェニル)プロピオネート 0.05 g をトルエン 20 g に溶解させ、約 300 g のメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を 40 °C で 6 時間乾燥させ、目的の樹脂組成物を得た。この樹脂組成物を溶融プレスする

29

ことによって厚さ 2mm の成形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表 1 に示す。

特 1

項目	単位	実施例1		実施例2		実施例3		実施例4	
		重合体 A	重合体 B	重合体 A	重合体 B	重合体 C	重合体 A	重合体 B	重合体 C
分子量(Mw)	g/mol	2200	200000	15000	200000	240000	2200	200000	15000
混合比		重量%	60	40	60	15	25	60	40
酸化防止剤E	重量%	0	0	0	0	0	0.5	0.5	0.5
シリコーン量D	重量%	0	0	0	0	0	0.1	0.1	0.1
流动性(MI)	g/10分	21	12	12	12	21	21	12	12
吸水率	%	0.09	0.08	0.08	0.08	0.09	0.09	0.08	0.08
耐熱性(Tg)	°C	135	142	142	142	135	135	142	142
比誘電率	—	2.3	2.2	2.2	2.2	2.3	2.3	2.2	2.2
曲げ強度	MPa	80	85	85	85	80	80	85	85
透過率	%	85	85	85	85	85	85	85	85
複屈折	—	1×10^{-6}							
色相変化	—	0.28	0.29	0.29	0.29	0.12	0.12	0.15	0.15

比較例 1

インデン 10.0 g 及びトルエン 30.0 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、25°Cで FeCl₃ 0.05 g を添加し、12時間反応させた。その後、この反応混合液にメタノール 0.05 g を添加した後、攪拌し均一溶液を得た。得られた均一溶液を 100 g のメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿 9.7 g を得た。この白色沈殿を減圧下で乾燥し、重合体（A）を得た。この重合体の重量平均分子量は 2200 であった。

次にスチレン 20.0 g、ベンゾイルパーオキサイド 0.1 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、蒸留水 60 g、磷酸カルシウム 0.01 g を添加し、70°Cで攪拌しながら 12 時間反応させた。得られた粒子状の重合体を単離し塩酸で洗浄した後、50°Cで約 2 時間乾燥して、重合体（B）を得た。得られた重合体の重量平均分子量は 200000 であった。

重合体（A）4.0 g と重合体（B）6.0 g をトルエン 20 g に溶解させ、約 300 g のメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を 40°C で 6 時間乾燥させ、目的の樹脂組成物の白色沈殿を得た。この樹脂組成物を溶融プレスすることによって厚さ 2 mm の成形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表 2 に示す。

比較例 2

インデン 10.0 g 及びニトロベンゼン 30.0 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、0°Cで FeCl₃ 0.05 g を添加し、12時間反応させた。その後、この反応混合液にメタノール 0.05 g を添加した後、攪拌し均一溶液を得た。得られた均一溶液を 100 g のメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿 9.7 g を得た。この白色沈殿を減圧下で乾燥し、重合体（A）を得た。この重合体の重量平均分子量は 7500 であった。

次にスチレン 20.0 g、ベンゾイルパーオキサイド 0.1 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、蒸留水 60 g、磷酸カルシウム 0.01 g を添加し、70°Cで攪拌しながら 12 時間反応させた。得られた粒子状の

重合体を単離し塩酸で洗浄した後、50°Cで約2時間乾燥して、重合体（B）を得た。得られた重合体の重量平均分子量は200000であった。

重合体（A）9.5gと重合体（B）0.5gをトルエン20gに溶解させ、約300gのメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を40°Cで6時間乾燥させ、目的の樹脂樹脂組成物の白色沈殿を得た。この樹脂組成物を溶融プレスすることによって厚さ2mmの成形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表2に示す。

表2

項目	単位	比較例1		比較例2	
		重合体 A	重合体 B	重合体 A	重合体 B
分子量(Mw)	g/mol	2200	200000	7500	200000
混合比	重量%	40	60	95	5
酸化防止剤E	重量%	0		0	
シリコーン量D	重量%	0		0	
流動性(MI)	g/10分	13		12	
吸水率	%	0.10		0.08	
耐熱性(Tg)	°C	121		142	
比誘電率	—	2.3		2.3	
曲げ強度	MPa	80		48	
透過率	%	85		85	
複屈折	—	5×10^{-5}		測定不能	
色相変化	—	0.28		0.29	

実施例 5

インデン 10.0 g 及びニトロベンゼン 30.0 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、0°Cで FeCl₃ 0.05 g を添加し、12時間反応させた。その後、この反応混合液にメタノール 0.05 g を添加した後、攪拌し均一溶液を得た。得られた均一溶液を 100 g のメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿 9.7 g を得た。この白色沈殿を減圧下に乾燥し重合体 (F) を得た。この重合体の重量平均分子量は 7500 であった。

スチレン 20.0 g、ベンゾイルバーオキサイド 0.1 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、蒸留水 60 g、磷酸カルシウム 0.01 g を添加し、70°Cで、攪拌しながら 12 時間反応させた。得られた粒子状の重合体を単離し塩酸で洗浄した後、50°Cにて約 2 時間乾燥して、重合体 (G) を得た。この重合体の重量平均分子量は 200000 であった。

予め、スチレン 18.0 g、p-クロロメチルスチレン 2.0 g、ベンゾイルバーオキサイド 0.1 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、蒸留水 60 g、磷酸カルシウム 0.01 g を添加し、70°Cで、攪拌しながら 12 時間反応させた。その後、粒子状の重合体を単離し塩酸で洗浄した後、50°Cで約 2 時間乾燥した。得られた粒子状重合体 6.0 g をトルエン 30 g に溶解し、更に、インデン 4.0 g を加え、均一になるまで攪拌した。その後、25°Cで、2,6-ビス(t-ブチル)ピリジン 0.003 g を加え溶解した後、塩化錫 0.03 g を添加して 24 時間放置し、グラフト重合体 (H) を得た。得られた反応混合液にメタノール 0.05 g を添加した後、この反応混合液を約 10 倍量のメタノール中に投入し、生成した重合体を単離した。この重合体を 40°Cで 6 時間乾燥し、重合体 (H) 9.8 g を得た。この重合体の重量平均分子量は 210000 であった。

重合体 (F) 5.5 g、重合体 (G) 3.5 g 及び重合体 (H) 1.0 g をトルエン 20 g に溶解させ、約 300 g のメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を 40°Cで 6 時間乾燥させ、目的の樹脂組成物の白色沈殿を得た。この樹脂組成物を溶融プレスすることによって厚さ 2 mm の成形材を作製し、試験片と

した。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表3に示す。

実施例6

インデン10.0g及びニトロベンゼン30.0gを100mlのフラスコ内に投入し、0°CでFeCl₃0.05gを添加し、12時間反応させた。その後、この反応混合液にメタノール0.05gを添加した後、攪拌し均一溶液を得た。得られた均一溶液を100gのメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿9.7gを得た。この白色沈殿を減圧下に乾燥し重合体(F)を得た。この重合体の重量均分子量は7500であった。

スチレン20.0g、ベンゾイルバーオキサイド0.1gを100mlフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、蒸留水60g、磷酸カルシウム0.01gを添加し、70°Cで、攪拌しながら12時間反応させた。得られた粒子状の重合体を単離し塩酸で洗浄した後、50°Cで約2時間乾燥して、重合体(G)を得た。この重合体の重量平均分子量は200000であった。

予め、スチレン18.0g、p-クロロメチルスチレン2.0g、ベンゾイルバーオキサイド0.1gを100mlのフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、蒸留水60g、磷酸カルシウム0.01gを添加し、70°Cで、攪拌しながら12時間反応させた。所定時間反応させた後、粒子状の重合体を単離し塩酸で洗浄した後、50°Cで約2時間乾燥した。得られた粒子状重合体の6.0gをトルエン30gに溶解し、更に、インデン4.0gを加え、均一になるまで攪拌した。その後、25°Cで、2,6-ビス(t-ブチル)ピリジン0.003gを加え溶解した後、塩化錫0.03gを添加し24時間放置し、グラフト重合体を得た。反応混合液にメタノール0.05gを添加した後、この反応混合液を約10倍量のメタノール中に投入し、生成した重合体を単離した。この重合体を40°Cで6時間乾燥し、重合体(H)9.8gを得た。この重合体の重量平均分子量は210000であった。

重合体(F)5.5g、重合体(G)3.5g、重合体(H)1.0g及び粘度500CSのジフェニルシリコーン(信越化学製)0.01gとn-オクタデシル

-3-(4-ヒドロキシ3,5-t-ジブチルフェニル)プロピオネート0.05gをトルエン20gに溶解させ、約300gのメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を40°Cで6時間乾燥させ、目的の樹脂混合物の白色沈殿を得た。この樹脂混合物を溶融プレスすることによって厚さ2mmの成形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表3に示す。

実施例7

インテン10.0g及びトルエン30.0gを100mlのフラスコ内に投入し、25°CでAlCl₃0.01gを添加し、6時間反応させた。その後、この反応混合液にメタノール0.01gを添加し後、攪拌し、均一溶液を得た。得られた均一溶液を100gのメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿9.8gを得た。この白色沈殿を減圧下に乾燥して重合体(F)を得た。この重合体の重量平均分子量は10000であった。

スチレン20.0g、ベンゾイルバーオキサイド0.1gを100mlのフラスコに投入し、攪拌溶解した後、蒸留水60g、磷酸カルシウムを単量体混合物に対して0.01g添加し、70°Cで、攪拌しながら12時間反応させた。得られた粒子状の重合体を単離し、重合体(G)を得た。この重合体の重量平均分子量は200000であった。

予め、スチレン18.0g、p-クロロメチルスチレン2.0g、ベンゾイルバーオキサイド0.1gを100mlのフラスコに投入し、攪拌溶解した後、蒸留水60g、磷酸カルシウムを単量体混合物に対して0.01g添加し、70°Cで、攪拌しながら12時間反応させた。得られた粒子状の重合体を単離し、塩酸で洗浄した後、50°Cで約2時間乾燥した。得られた粒子状重合体6.0gをトルエン30gに溶解し、更に、インテン4.0gを加え均一になるまで攪拌した。その後、25°Cにて、2,6-ビス(t-ブチル)ピリジン0.003gを加え溶解した後、塩化錫0.03gを添加して24時間放置し、グラフト重合体(H)を得た。得られた反応混合液にメタノール0.05gを添加した後、この反応液を10倍量のメタノールに投入し、生成した重合体を単離した。この重合体を40°C

36

で6時間乾燥し、重合体(H)9.8gを得た。この重合体の重量平均分子量は200000であった。

重合体(F)6.0g、重合体(G)3.5g、重合体(H)0.5g及び粘度500CSのジフェニルシリコーン(信越化学製)0.01gとn-オクタデシル-3-(4-ヒドロキシ3,5-t-ジブチルフェニル)プロピオネート0.05gをトルエン20gに溶解させ、やく300gのメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を40°Cで6時間乾燥させ、目的の樹脂組成物を得た。この樹脂組成物を溶融プレスすることによって厚さ2mmの成形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表3に示す。

表3

項目	単位	実施例5		実施例6		実施例7	
		重合体F	重合体G	重合体H	重合体F	重合体G	重合体H
分子量(Mw)	g/mol	7500	200000	210000	7500	200000	210000
混合比	重量%	55	35	10	55	35	10
酸化防止剤E	重量%	0		0.5		0.5	
シリコーン量D	重量%	0		0.1		0.1	
流动性(MI)	g/10分	18		18		22	
吸水率	%	0.09		0.09		0.08	
耐熱性(Tg)	°C	147		147		152	
比誘電率	—	2.3		2.3		2.2	
曲げ強度	MPa	80		80		80	
透過率	%	85		85		85	
複屈折	—	1×10^{-6}		1×10^{-6}		1×10^{-6}	
色相変化	—	0.35		0.12		0.11	

比較例3

インデン 10.0 g 及びニトロベンゼン 30.0 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、0°Cで FeCl₃ 0.05 g を添加し、12時間反応させた。その後、この反応混合液にメタノール 0.05 g を添加した後、攪拌し均一溶液を得た。得られた均一溶液を 100 g のメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿 9.7 g を得た。この白色沈殿を減圧下に乾燥し重合体 (F) を得た。この重合体の重量平均分子量は 7500 であった。

ステレン 20.0 g、ベンジルバーオキサイド 0.1 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、蒸留水 60 g、磷酸カルシウムを単量体混合物に対して 0.01 g 添加し、70°Cで、攪拌しながら 12 時間反応させた。得られた粒子状の重合体を単離し塩酸で洗浄した後、50°Cで約 2 時間乾燥して、重合体 (G) を得た。この重合体の重量平均分子量は 200000 であった。

重合体 (F) 6.0 g、重合体 (G) 4.0 g をトルエン 20 g に溶解させ、約 300 g のメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を 40°Cで 6 時間乾燥させ、樹脂混合物の白色沈殿を得た。この樹脂混合物を溶融プレスすることによって厚さ 2 mm の成形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表 4 に示す。

表 4

項目	単位	比較例3	
		重合体 F	重合体 G
分子量(Mw)	g/mol	7500	200000
混合比	重量%	60	40
酸化防止剤 E	重量%	0	
シリコーン量 D	重量%	0	
流動性(MI)	g/10 分	17	
吸水率	%	0.10	
耐熱性(Tg)	°C	142	
比誘電率	—	2.3	
曲げ強度	MPa	75	
透過率	%	55	
複屈折	—	測定不能	
色相変化	—	0.35	

実施例 8

インデン 9.95 g、ビニルピリジン 0.05 g 及び塩化メチレン 30.0 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、-40°C で FeCl₃ 0.01 g を添加し、24 時間反応させた。その後、室温で、この反応混合液にメタノール 0.05 g を添加した後、攪拌し均一溶液を得た。得られた均一溶液を 100 g のメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿 9.8 g を得た。この白色沈殿を減圧下で乾燥し、重合体 (I) を得た。この重合体の重量平均分子量は 97000 であった。

スチレン 19.9 g、メタクリル酸 0.1 g 及びベンゾイルバーオキサイド 0.1 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、密封し、70°C で振とうしながら 12 時間反応させた。得られた重合体を粉碎した後、メタノールで洗浄した後、50°C で約 8 時間乾燥して、重合体 (J) を得た。得られた重合体の重量平均分子量は 250000 であった。

重合体 (I) 6.0 g と重合体 (J) 4.0 g 及び粘度 500 CS のジフェニルシリコーン 0.01 g と n-オクタデシル-3-(4-ヒドロキシ 3,5-t-ジブチルフェニル) プロピオネート 0.05 g をトルエン 20 g に溶解させ、約 300 g のメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を 40°C で 6 時間乾燥させ、目的の樹脂組成物を得た。この樹脂組成物を溶融プレスすることによって厚さ 2 mm の成形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表 5 に示す。

実施例 9

インデン 9.95 g、ビニルピリジン 0.05 g 及びトルエン 30.0 g を 100 ml フラスコ内に投入し、-4°C で AlCl₃ 0.01 g を添加し、24 時間反応させた。その後、室温で、この反応液にメタノール 0.05 g を添加した後、攪拌して均一溶液を得た。得られて均一溶液を 100 g のメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿 9.7 g を得た。この白色沈殿を減圧下で乾燥し、重合体 (I) を得た。この重合体の重量平均分子量は 50000 であった。

スチレン 19.8 g、メタクリル酸 0.2 g 及びベンゾイルバーオキサイド 0.

40

1 g を 100 ml のフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、密封し、70 °C で振とうしながら 12 時間反応させた。得られた重合体粉碎した後、メタノールで洗浄した後、50 °C で 8 時間乾燥して、重合体 (J) を得た。得られた重量平均分子量は 250000 であった。

重合体 (I) 6.0 g と重合体 (J) 4.0 g 及び粘度 500 c_s のジフェニルシリコーン（信越化学製）0.01 g と n-オクタデシル-3-(4-ヒドロキシ 3,5-t-ジブチルフェニル) プロピオネート 0.05 g をトルエン 20 g に溶解させ、やく 300 g のメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を 40 °C で 6 時間乾燥させ、目的の樹脂組成物を得た。この樹脂組成物を溶融プレスすることによって厚さ 2 mm の成形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表 5 に示す。

表 5

項目	単位	実施例8		実施例9	
		重合体 I	重合体 J	重合体 I	重合体 J
分子量(Mw)	g/mol	97000	250000	50000	250000
混合比	重量%	60	40	60	40
複素環量	mol%	0.55	0	0.55	0
カルボキシル基量	mol%	0	0.53	0	1.06
複素環／カルボキシル基比率	mol/mol	1.04		0.52	
酸化防止剤 E	重量%	0.5		0.5	
シリコーン量 D	重量%	0.1		0.1	
流動性(MI)	g/10 分	15		12	
吸水率	%	0.10		0.11	
耐熱性(Tg)	°C	147		142	
比誘電率	—	2.3		2.3	
曲げ強度	MPa	80		82	
透過率	%	85		86	
複屈折	—	1×10^{-6}		1×10^{-6}	
色相変化	—	0.12		0.11	

41

比較例 4

重合体 (I) の合成でインデン 10.0 g のみを用い、ビニルピリジン及び塩化メチレンを用いないこと、及び重合体 (H) の合成で、スチレン 20.0 g のみを用い、メタクリル酸を用いないこと以外は実施例 7 と同様に行った。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表 6 に示す。

比較例 5

粘度 500CS のジフェニルシリコーン（信越化学製）0.01 g と n-オクタデシル-3-(4-ヒドロキシ 3,5-t-ジブチルフェニル) プロピオネート 0.05 g を用いないこと以外は実施例 7 と同様に行った。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表 6 に示す。

表 6

項目	単位	比較例4		比較例5	
		重合体 I	重合体 J	重合体 I	重合体 J
分子量(Mw)	g/mol	15000	250000	15000	250000
混合比	重量%	60	40	60	40
複素環量	mol%	0	0	0.55	0
カルボキシル基量	mol%	0	0	0	0.53
複素環／カルボキシル基比率	mol/mol	—	—	—	1.04
酸化防止剤 E	重量%	0.5	—	0	—
シリコーン量 D	重量%	0.1	—	0	—
流動性(MI)	g/10 分	14	—	15	—
吸水率	%	0.09	—	0.09	—
耐熱性(Tg)	°C	142	—	143	—
比誘電率	—	2.2	—	2.2	—
曲げ強度	MPa	80	—	80	—
透過率	%	42	—	85	—
複屈折	—	1×10^{-6}	—	1×10^{-6}	—
色相変化	—	0.15	—	3.7	—

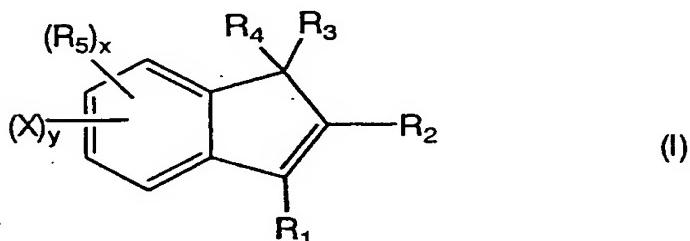
産業上の利用可能性

本発明により、低吸湿性、低複屈折性、低誘電率性であり、流動性に優れ、加熱時の色変化が少なく、射出成形時の離型性に優れる樹脂組成物を提供することができる。またこの樹脂組成物を成形して得られる成形材、シートまたはフィルムを用いて、低吸湿性、低複屈折性、低誘電率性の光学用部品を提供することができる。

43

請求の範囲

1. 下記の重合体（A）、（B）及び／又は（C）を含む樹脂組成物（a）。
 - (A) 下記一般式（I）で示されるインテン又はインテン誘導体を1種またはそれ以上含む重合体
 - (B) ポリスチレン又はポリスチレン誘導体からなる重合体
 - (C) スチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な单量体からなる重合体



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅、R₆は同一であっても異なっていても良く、水素原子；窒素原子、酸素原子又はケイ素原子を含有する1価の炭化水素基；炭素数1～6のアルキル基；1価の芳香族系炭化水素基を示す。Xは水素原子、ハロゲン原子、アシル基、アルコキシ基又はニトリル基を示す。xは0または1～4の整数を示し、yは1～4の整数を示す。但しx+y=4である。)

2. 重合体（A）、（B）及び／又は（C）を含む樹脂組成物に、ジフェニルシリコーン（D）及び／又はフェノール系酸化防止剤（E）を添加した請求項1記載の樹脂組成物（a）。
3. 飽和吸水率は0.4%以下であり、200%延伸時の複屈折率は $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-6}$ の範囲にある請求項1又は2記載の樹脂組成物（a）。
4. 前記重合体（A）の重量平均分子量は、80000未満である請求項1～3のいずれか一項に記載の樹脂組成物（a）。
5. 前記重合体（B）及び／又は前記重合体（C）の重量平均分子量は、50000以上である請求項1～4のいずれか一項に記載の樹脂組成物（a）。

6. 前記重合体（A）は、樹脂組成物（a）の総量に対して30～90重量%である請求項1～5のいずれか一項に記載の樹脂組成物（a）。

7. 下記の重合体（F）、（G）及び（H）を含む樹脂組成物（b）。

（F）前記一般式（I）で示されるインデン又はインデン誘導体を1種またはそれ以上含む重合体

（G）ポリスチレン又はポリスチレン誘導体からなる重合体

（H）スチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な单量体からなる重合体の側鎖に、一般式（I）で示されるインデン又はインデン誘導体の少なくとも1種を含む重合体が結合した構造を有するグラフト重合体

8. 重合体（F）、（G）及び（H）を含む樹脂組成物に、

ジフェニルシリコーン（D）及び／又はフェノール系酸化防止剤（E）を添加した請求項7記載の樹脂組成物（b）。

9. 飽和吸水率は0.4%以下であり、200%延伸時の複屈折率は $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-6}$ の範囲にある請求項7又は8記載の樹脂組成物（b）。

10. 前記重合体（F）の重量平均分子量は、4000以上である請求項7～9のいずれか一項に記載の樹脂組成物（b）。

11. 前記重合体（G）及び前記重合体（H）の重量平均分子量は、50000以上である請求項7～10のいずれか一項に記載の樹脂組成物（b）。

12. 前記重合体（F）は、樹脂組成物（b）の総量に対して30～90重量%である請求項7～11のいずれか一項に記載の樹脂組成物（b）。

13. 下記の重合体（I）及び（J）と、ジフェニルシリコーン（D）及びフェノール系酸化防止剤（E）を含む樹脂組成物（c）。

（I）前記一般式（I）で示されるインデン又はインデン誘導体を1種またはそれ以上含む重合体であり、側鎖に複素環構造を含有する重合体

（J）スチレン又はスチレン誘導体と、それらと共に重合可能な单量体とから成る

重合体であり、側鎖にカルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基を含有する重合体

14. 飽和吸水率は0.4%以下であり、200%延伸時の複屈折率は -2×10^{-6} ～ 2×10^{-6} の範囲にある請求項13記載の樹脂組成物(c)。

15. 重合体(I)中の複素環構造の含有量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.01～5mol%であり、重合体(J)中のカルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基の含有量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.01～5mol%である請求項13又は14に記載の樹脂組成物(c)。

16. 複素環構造と、カルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基のモル比は、0.1～10.0である請求項13～15のいずれかに記載の樹脂組成物(c)。

17. 重合体(I)は、樹脂組成物(c)の総量に対して30～90重量%である請求項13～16のいずれかに記載の樹脂組成物(c)。

18. ジフェニルシリコーン(D)の添加量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.01～1.0重量%であり、フェノール系酸化防止剤(E)の添加量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.1～3.0重量%である請求項13～17のいずれかに記載の樹脂組成物(c)。

19. 請求項1に記載の樹脂組成物(a)、請求項7に記載の(b)、請求項13に記載の(c)の中から選ばれる樹脂組成物を成形して得られる成形材。

20. 請求項1に記載の樹脂組成物(a)、請求項7に記載の(b)、請求項13に記載の樹脂組成物(c)の中から選ばれる樹脂組成物から得られるシート。

21. 請求項1に記載の樹脂組成物(a)、請求項7に記載の(b)、請求項13に記載の樹脂組成物(c)の中から選ばれる樹脂組成物から得られるフィルム。

22. 請求項19～21の成形材、シート又はフィルムを用いた光学用部品。



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/04215

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C08L45/00, 25/00, G02B1/04, G11B7/24

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ C08L45/00-45/02, 25/00-25/18, G02B1/04, G11B7/24

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 10-231403, A (ARAKAWA CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.), 02 September, 1998 (02.09.98), Claims; Par. Nos. [0001], [0024] (Family: none)	1, 3-5, 19-21
Y		2
A		6-18, 22
EX	JP, 11-246733, A (Kanegafuchi Chem. Ind. Co., Ltd.), 14 September, 1999 (14.09.99), Claims; Par. Nos. [0052] to [0053], [0072] (Family: none)	1-2, 4-5, 19
X	EP, 393685, A (KAWASAKI STEEL CORPORATION), 24 October, 1990 (24.10.90), Claims; page 6, lines 6 to 9 & JP, 3-47814, A	1, 3-4, 19
Y		20-21
A	Claims; page 5, lower left column, lines 8 to 12; implementation example 19	2, 5-18, 22
X	US, 4066717, A (The Standard Oil Company), 03 January, 1978 (03.01.78), Claims; Column 1, lines 6 to 38 & JP, 52-80341, A	1, 3, 6, 19
Y		4-5, 20-21
A	Claims; page 2, upper left column, line 18 to page 2, upper right column, line 12	2, 7-18, 22

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T"	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&"	document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		

Date of the actual completion of the international search
11 September, 2000 (11.09.00)

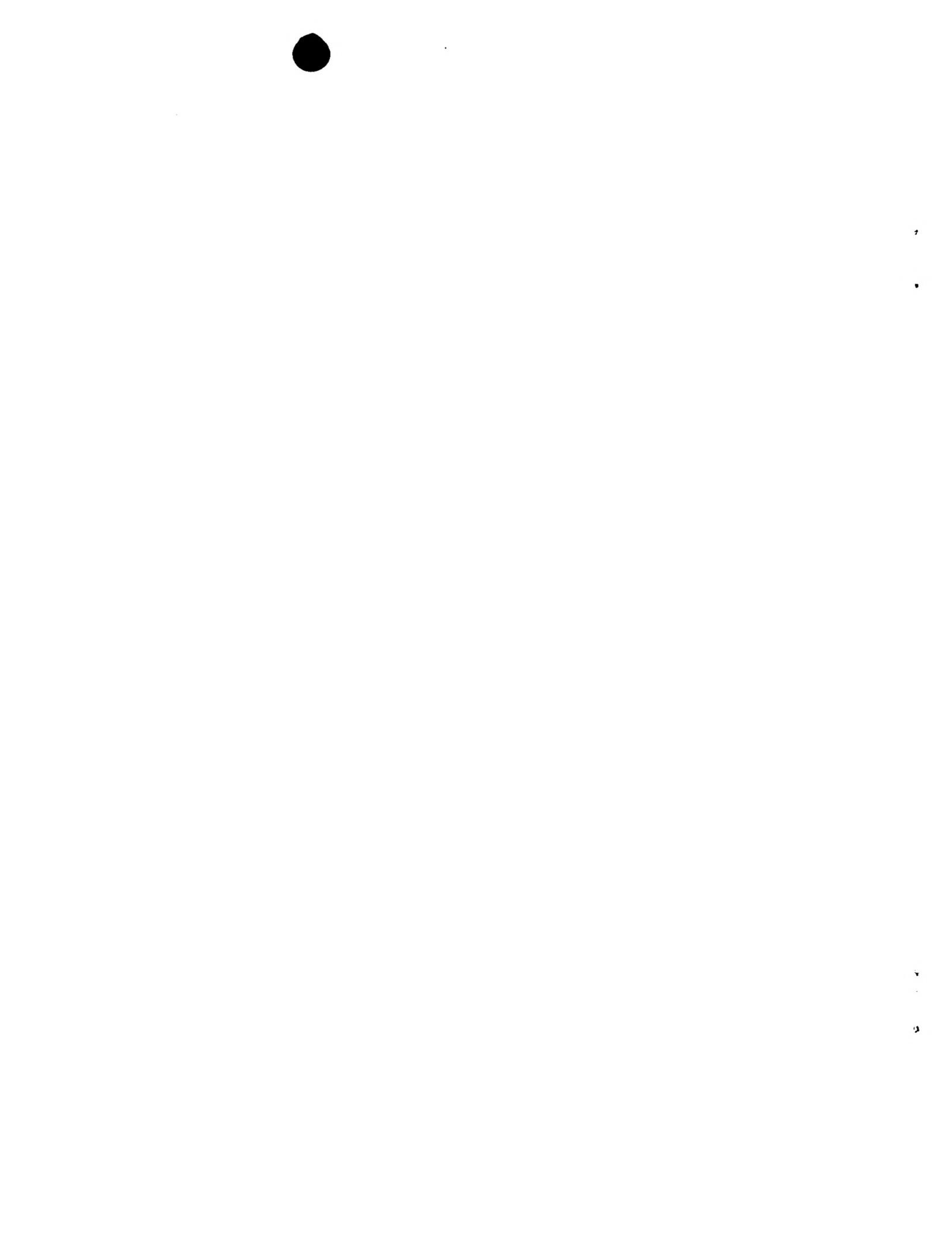
Date of mailing of the international search report
19 September, 2000 (19.09.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPOO/04215

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. C17 C08L45/00, 25/00, G02B1/04, G11B7/24

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. C17 C08L45/00-45/02, -25/00-25/18, G02B1/04, G11B7/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年
 日本国実用新案登録公報 1996-2000年
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 10-231403, A (荒川化学工業株式会社), 02.9月. 1998 (02.09.98), 特許請求の範囲, 【0001】 , 【0024】 (ファミリーなし)	1, 3-5, 19-21
Y		2
A		6-18, 22
EX	JP, 11-246733, A (鐘淵化学工業株式会社), 14.9月. 1999 (14.09.99), 特許請求の範囲, 【0052】 - 【0053】 , 【0072】 (ファミリーなし)	1-2, 4-5, 19
X	EP, 393685, A (KAWASAKI STEEL CORPORATION), 24.10月. 1990 (24.10.90), 特許請求の範囲, 第6頁第6-9行	1, 3-4, 19
Y		20-21
A	& JP, 3-47814, A, 特許請求の範囲, 第5頁左下欄8-12行, 実施例19	2, 5-18, 22

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

11. 09. 00

国際調査報告の発送日

19.09.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

内田 靖恵

4 J 9553



電話番号 03-3581-1101 内線 3457

C (続き) 関連すると認められる文献		関連する請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
X	US, 4066717, A (The Standard Oil Company), 3. 1月. 1978 (03. 01. 78),	1, 3, 6, 19
Y	特許請求の範囲, 第1欄6-38行	4-5, 20-21
A	& JP, 52-80341, A, 特許請求の範囲, 第2頁左上欄第18行-同頁右上欄12行	2, 7-18, 22

PATIENT COOPERATION TREATMENT

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION
(PCT Rule 61.2)

Date of mailing: 04 January 2001 (04.01.01)	Washington, D.C. ETATS-UNIS D'AMERIQUE in its capacity as elected Office
International application No.: PCT/JP00/04215	Applicant's or agent's file reference: 200021OP1010
International filing date: 27 June 2000 (27.06.00)	Priority date: 28 June 1999 (28.06.99)
Applicant: YAMASHITA, Yukihiko et al	

- 1. The designated Office is hereby notified of its election made:**

in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:
25 July 2000 (25.07.00)

in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election was
 was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

<p>The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No.: (41-22) 740.14.35</p>	<p>Authorized officer:</p> <p style="text-align: center;">J. Zahra</p> <p>Telephone No.: (41-22) 338.83.38</p>
---	--

THIS PAGE BLANK (reverse)

ST

特許協力条約

PCT

国際予備審査報告

REC'D 15 JUN 2001

WIPO PCT

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT 36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 200021OP1010	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/IPEA/416）を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPOO/04215	国際出願日 (日.月.年) 27.06.00	優先日 (日.月.年) 28.06.99
国際特許分類 (IPC) Int. C17 C08L45/00, 25/00, G02B1/04, G11B7/24		
出願人（氏名又は名称） 日立化成工業株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条（PCT 36条）の規定に従い送付する。

2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。

この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関に対して訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面も添付されている。
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)
この附属書類は、全部で 2 ページである。

3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

- I 国際予備審査報告の基礎
- II 優先権
- III 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV 発明の單一性の欠如
- V PCT 35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ある種の引用文献
- VII 国際出願の不備
- VIII 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 25.07.00	国際予備審査報告を作成した日 30.05.01
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 内田 靖恵 電話番号 03-3581-1101 内線 3457
	4J 9553

THIS PAGE BLANK (upper)

I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。PCT規則70.16, 70.17)

出願時の国際出願書類

明細書 第 1-42 ページ、
明細書 第 _____ ページ、
明細書 第 _____ ページ、
出願時に提出されたもの
国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
付の書簡と共に提出されたもの

請求の範囲 第 3-4, 5-18, 22 項、
請求の範囲 第 _____ 項、
請求の範囲 第 _____ 項、
請求の範囲 第 _____ 項、
出願時に提出されたもの
PCT19条の規定に基づき補正されたもの
国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
13.02.01 付の書簡と共に提出されたもの

図面 第 _____ ページ/図、
図面 第 _____ ページ/図、
図面 第 _____ ページ/図、
出願時に提出されたもの
国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
付の書簡と共に提出されたもの

明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、
明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、
明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、
出願時に提出されたもの
国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- 國際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
 PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- この国際出願に含まれる書面による配列表
 この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

明細書 第 _____ ページ
 請求の範囲 第 _____ 項
 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかつたものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)

THIS PAGE BLANK (use reverse)

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条（PCT35条(2)）に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)

請求の範囲 3, 6-18, 20-22 有
請求の範囲 1-2, 4-5, 19 無

進歩性 (I S)

請求の範囲 3, 6-18, 20-22 有
請求の範囲 1-2, 4-5, 19 無

産業上の利用可能性 (I A)

請求の範囲 1-22 有
請求の範囲 無

2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

請求の範囲 1-2, 4-5, 19 に記載された発明は、国際調査報告で引用された文献 (JP, 11-246733, A (鐘淵化学工業株式会社), 14. 9月. 1999 (14. 09. 99), 特許請求の範囲, 【0052】-【0054】, 【0072】) に記載されているから新規性を有しない。

THIS PAGE BLANK (use reverse)

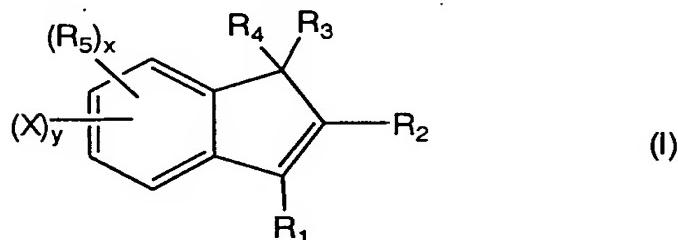
請求の範囲

1. (補正後) 下記の重合体 (A) と、(B) 及び／又は (C) とを含む、光学用部品用樹脂組成物 (a)。

(A) 下記一般式 (I) で示されるインデン又はインデン誘導体を 1 種またはそれ以上含む重合体

(B) ポリスチレン又はポリスチレン誘導体からなる重合体

(C) スチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な单量体からなる重合体



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅は同一であっても異なっていても良く、水素原子；窒素原子、酸素原子又はケイ素原子を含有する 1 倍の炭化水素基；炭素数 1 ~ 6 のアルキル基；1 倍の芳香族系炭化水素基を示す。X は水素原子、ハロゲン原子、アシル基、アルコキシ基又はニトリル基を示す。x は 0 または 1 ~ 4 の整数を示し、y は 1 ~ 4 の整数を示す。但し x + y = 4 である。)

2. (補正後) 重合体 (A) と、(B) 及び／又は (C) とを含む樹脂組成物に、ジフェニルシリコーン (D) 及び／又はフェノール系酸化防止剤 (E) を添加した請求項 1 記載の樹脂組成物 (a)。

3. 飽和吸水率は 0.4 % 以下であり、200 % 延伸時の複屈折率は -2×10^{-6} ~ 2×10^{-6} の範囲にある請求項 1 又は 2 記載の樹脂組成物 (a)。

4. 前記重合体 (A) の重量平均分子量は、80000 未満である請求項 1 ~ 3 のいずれか一項に記載の樹脂組成物 (a)。

5. 前記重合体 (B) 及び／又は前記重合体 (C) の重量平均分子量は、50000 以上である請求項 1 ~ 4 のいずれか一項に記載の樹脂組成物 (a)。

THIS PAGE BLANK (USPS)
6

重合体であり、側鎖にカルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基を含有する重合体。

14. 飽和吸水率は0.4%以下であり、200%延伸時の複屈折率は -2×10^{-6} ～ 2×10^{-6} の範囲にある請求項13記載の樹脂組成物(c)。

15. 重合体(I)中の複素環構造の含有量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.01～5mol%であり、重合体(J)中のカルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基の含有量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.01～5mol%である請求項13又は14に記載の樹脂組成物(c)。

16. 複素環構造と、カルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基のモル比は、0.1～10.0である請求項13～15のいずれかに記載の樹脂組成物(c)。

17. 重合体(I)は、樹脂組成物(c)の総量に対して30～90重量%である請求項13～16のいずれかに記載の樹脂組成物(c)。

18. ジフェニルシリコーン(D)の添加量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.01～1.0重量%であり、フェノール系酸化防止剤(E)の添加量は、樹脂組成物(c)の総量に対して0.1～3.0重量%である請求項13～17のいずれかに記載の樹脂組成物(c)。

19. (補正後) 請求項1に記載の樹脂組成物(a)、請求項7に記載の樹脂組成物(b)及び請求項13に記載の(c)中から選ばれる樹脂組成物を成形して得られる光学用部品用成形材。

20. (補正後) 請求項1に記載の樹脂組成物(a)、請求項7に記載の樹脂組成物(b)及び請求項13に記載の(c)中から選ばれる樹脂組成物から得られる光学用部品用シート。

21. (補正後) 請求項1に記載の樹脂組成物(a)、請求項7に記載の樹脂組成物(b)及び請求項13に記載の(c)中から選ばれる樹脂組成物から得られる光学用部品用フィルム。

22. 請求項19～21の成形材、シート又はフィルムを用いた光学用部品。

THIS PAGE BLANK (uspt6)

37
Translation
10/019753
SOL

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 200021OP1010	FOR FURTHER ACTION	See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No. PCT/JP00/04215	International filing date (day/month/year) 27 June 2000 (27.06.00)	Priority date (day/month/year) 28 June 1999 (28.06.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08L 45/00, 25/00, G02B 1/04, G11B 7/24		
Applicant	HITACHI CHEMICAL CO., LTD.	

<ol style="list-style-type: none"> This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36. This REPORT consists of a total of <u>3</u> sheets, including this cover sheet. <p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>2</u> sheets.</p>
<ol style="list-style-type: none"> This report contains indications relating to the following items: <ul style="list-style-type: none"> I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report II <input type="checkbox"/> Priority III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 25 July 2000 (25.07.00)	Date of completion of this report 30 May 2001 (30.05.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USRA10)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/04215

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:^{*} the international application as originally filed the description:

pages _____ 1-42 _____, as originally filed

pages _____, filed with the demand

pages _____, filed with the letter of _____

 the claims:

pages _____ 3-4.5-18.22 _____, as originally filed

pages _____, as amended (together with any statement under Article 19) _____, filed with the demand

pages _____, filed with the letter of _____

pages _____ 1-2,19-21 _____, filed with the letter of 13 February 2001 (13.02.2001)

 the drawings:

pages _____, as originally filed

pages _____, filed with the demand

pages _____, filed with the letter of _____

 the sequence listing part of the description:

pages _____, as originally filed

pages _____, filed with the demand

pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item. These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

 the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)). the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)). the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

 contained in the international application in written form. filed together with the international application in computer readable form. furnished subsequently to this Authority in written form. furnished subsequently to this Authority in computer readable form. The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished. The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.4. The amendments have resulted in the cancellation of: the description, pages _____ the claims, Nos. _____ the drawings, sheets/fig _____5. This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	3,6-18,20-22	YES
	Claims	1-2,4-5,19	NO
Inventive step (IS)	Claims	3,6-18,20-22	YES
	Claims	1-2,4-5,19	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-22	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

The subject matters of claims 1, 2, 4, 5 and 19 do not appear to be novel, since they are described in the document [JP, 11-246733, A (Kaneka Corp.), 14 September, 1999 (14.09.99), claims, [0052]-[0054], [0072]] cited in the ISR.

THIS PAGE BLANK (uspto)

PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

Date of mailing (day/month/year)
20 October 2000 (20.10.00)

To:

TOYAMA, Tsutomu
Yokoyama Building 6th floor
4-10, Higashi Nihonbashi 3-chome
Chuo-ku, Tokyo 103-0004
JAPON

Applicant's or agent's file reference
200021OP1010

IMPORTANT NOTIFICATION

International application No.
PCT/JP00/04215

International filing date (day/month/year)
27 June 2000 (27.06.00)

International publication date (day/month/year)
Not yet published

Priority date (day/month/year)
28 June 1999 (28.06.99)

Applicant

HITACHI CHEMICAL CO., LTD. et al

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An asterisk(*) appearing next to a date of receipt in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
28 June 1999 (28.06.99)	11/181181	JP	25 Augu 2000 (25.08.00)
28 June 1999 (28.06.99)	11/181182	JP	25 Augu 2000 (25.08.00)
28 Janu 2000 (28.01.00)	2000/24774	JP	25 Augu 2000 (25.08.00)
28 Janu 2000 (28.01.00)	2000/24775	JP	25 Augu 2000 (25.08.00)
28 Janu 2000 (28.01.00)	2000/24776	JP	25 Augu 2000 (25.08.00)

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland
Facsimile No. (41-22) 740.14.36

Authorized officer
Marc Salzman
Telephone No. (41-22) 338.83.38

003599460

Form PCT/IB/304 (July 1998)

THIS PAGE BLANK (up to)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INFORMATION CONCERNING ELECTED
OFFICES NOTIFIED OF THEIR ELECTION

(PCT Rule 61.3)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

TOYAMA, Tsutomu
 Yokoyama Building 6th floor
 4-10, Higashi Nihonbashi 3-chôme
 Chuo-ku, Tokyo 103-0004
 JAPON

Date of mailing (day/month/year)
 04 January 2001 (04.01.01)

Applicant's or agent's file reference
 200021OP1010

IMPORTANT INFORMATION

International application No.
 PCT/JP00/04215

International filing date (day/month/year)
 27 June 2000 (27.06.00)

Priority date (day/month/year)
 28 June 1999 (28.06.99)

Applicant
 HITACHI CHEMICAL CO., LTD. et al

1. The applicant is hereby informed that the International Bureau has, according to Article 31(7), notified each of the following Offices of its election:

EP :AT,BE,CH,CY,DE,DK,ES,FI,FR,GB,GR,IE,IT,LU,MC,NL,PT,SE
 National :JP,KR,US

2. The following Offices have waived the requirement for the notification of their election; the notification will be sent to them by the International Bureau only upon their request:

None

3. The applicant is reminded that he must enter the "national phase" before the expiration of 30 months from the priority date before each of the Offices listed above. This must be done by paying the national fee(s) and furnishing, if prescribed, a translation of the international application (Article 39(1)(a)), as well as, where applicable, by furnishing a translation of any annexes of the international preliminary examination report (Article 36(3)(b) and Rule 74.1).

Some offices have fixed time limits expiring later than the above-mentioned time limit. For detailed information about the applicable time limits and the acts to be performed upon entry into the national phase before a particular Office, see Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The entry into the European regional phase is postponed until 31 months from the priority date for all States designated for the purposes of obtaining a European patent.

The International Bureau of WIPO
 34, chemin des Colombettes
 1211 Geneva 20, Switzerland

Faximile No. (41-22) 740.14.36

Authorized officer:

J. Zahra

Telephone No. (41-22) 338.83.38

THIS PAGE BLANK (useptu)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/04215

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl' C08L45/00, 25/00, G02B1/04, G11B7/24

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl' C08L45/00-45/02, 25/00-25/18, G02B1/04, G11B7/24

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Kobo 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Kobo 1996-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Kobo 1971-2000 Toroku Jitsuyo Shinan Kobo 1994-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 10-231403, A (ARAKAWA CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.), 02 September, 1998 (02.09.98),	1,3-5,19-21
Y		2
A	Claims; Par. Nos. [0001], [0024] (Family: none)	6-18,22
EX	JP, 11-246733, A (Kanegafuchi Chem. Ind. Co., Ltd.), 14 September, 1999 (14.09.99), Claims; Par. Nos. [0052] to [0053], [0072] (Family: none)	1-2,4-5,19
X	EP, 393685, A (KAWASAKI STEEL CORPORATION), 24 October, 1990 (24.10.90),	1,3-4,19
Y		20-21
A	Claims; page 6, lines 6 to 9 & JP, 3-47814, A	2,5-18,22
	Claims; page 5, lower left column, lines 8 to 12; implementation example 19	
X	US, 4066717, A (The Standard Oil Company), 03 January, 1978 (03.01.78),	1,3,6,19
Y		4-5,20-21
A	Claims; Column 1, lines 6 to 38 & JP, 52-80341, A	2,7-18,22
	Claims; page 2, upper left column, line 18 to page 2, upper right column, line 12	

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

- * Special categories of cited documents:
- "V" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "U" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "A" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search 11 September, 2000 (11.09.00)	Date of mailing of the international search report 19 September, 2000 (19.09.00)
--	---

Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

THIS PAGE BLANK (up to)

PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

Date of mailing (day/month/year) 04 January 2001 (04.01.01)	RECEIVED JAN 15 2001 SEARCHED AND INDEXED SERIAL NUMBER HAGUCHI	
Applicant's or agent's file reference 200021OP1010	IMPORTANT NOTICE	
International application No. PCT/JPO0/04215	International filing date (day/month/year) 27 June 2000 (27.06.00)	Priority date (day/month/year) 28 June 1999 (28.06.99)
Applicant HITACHI CHEMICAL CO., LTD. et al		

- Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:
KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

- The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:
EP,JP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 48.1(a-bis)).

- Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 04 January 2001 (04.01.01) under No. WO 01/00728

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/I8/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer J. Zahra Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際審査局



(43) 国際公開日
2001年1月4日 (04.01.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/00728 A1

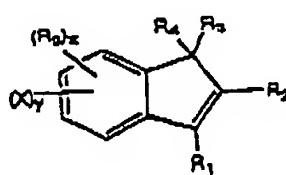
- (51) 国際特許分類: C08L 45/00.
25/00, G02B 1/04, G11B 7/24
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/04215
- (22) 国際出願日: 2000年6月27日 (27.06.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願平11/181181 1999年6月28日 (28.06.1999) JP
特願平11/181182 1999年6月28日 (28.06.1999) JP
特願2000/24774 2000年1月28日 (28.01.2000) JP
特願2000/24775 2000年1月28日 (28.01.2000) JP
特願2000/24776 2000年1月28日 (28.01.2000) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 日立化成工業株式会社 (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.)
[JP/JP]; 〒163-0449 東京都新宿区西新宿二丁目1番1号 新宿三井ビル 私書箱233号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 山下幸彦 (YAMASHITA, Yukihiko) [JP/JP]; 〒290-0158 千葉県市原
- 市ちはら台6-9-6 Chiba (JP). 岩田修一 (IWATA, Shuichi) [JP/JP]; 〒290-0037 千葉県市原市飯沼173 飯沼寮126号室 Chiba (JP). 山中哲郎 (YAMANAKA, Tetsuo) [JP/JP]; 〒290-0037 千葉県市原市飯沼173 飯沼寮146号室 Chiba (JP). 吉田明弘 (YOSHIDA, Akihiro) [JP/JP]; 〒290-0051 千葉県市原市若塚3-6-16 サンライズシティ池田A208 Chiba (JP). 牛窓京子 (USHIKUBO, Keiko) [JP/JP]; 〒297-0034 千葉県茂原市中の島町752 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 速山 効, 外 (TOYAMA, Tsutomu et al.); 〒103-0004 東京都中央区東日本橋3丁目4番10号 ヨコヤマビル6階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(国内): JP, KR, US.
- (84) 指定国(広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類:
— 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイドノート」を参照。

(54) Title: LOW-HYGROSCOPICITY LOW-BIREFRINGENCE RESIN COMPOSITIONS, MOLDING MATERIAL OBTAINED THEREFROM, SHEET OR FILM, AND OPTICAL PART

(54) 発明の名称: 低吸湿低屈屈折樹脂組成物、これから得られる成形材、シート又はフィルムおよび光学用部品



(I)

(57) Abstract: Low-hygroscopicity low-birefringence resin compositions. One of the compositions is a resin composition (a) comprising the following polymer (A) and polymer (B) and/or (C). Another is a resin composition (b) comprising the following polymers (A), (B), and (H). Still another is a resin composition (c) comprising the following polymers (I) and (J), a diphenylsilicone (D), and a phenolic antioxidant (E). (A) A polymer comprising units of indene or an indene derivative represented by general formula (I). (B) Polystyrene or a derivative comprising a polystyrene derivative. (C) A polymer obtained from styrene or a styrene derivative and a copolymerizable monomer. (H) A graft polymer comprising the polymer (C) and bonded to a side chain thereof a polymer comprising units of indene or an indene derivative represented by general formula (I). (I) A polymer comprising the polymer (A) having a heterocyclic structure in a side chain thereof. (J) A polymer comprising the polymer (C) having a carboxyl group and/or a phenolic hydroxyl group in a side chain thereof.

WO 01/00728 A1

(続葉有)

THIS PAGE BLANK (use reverse)

10/019753

1/5

3000210P1010

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本(出願用) - 印刷日時 2000年06月27日 (27.06.2000) 火曜日 16時02分43秒

0	受理官庁記入欄 0-1 國際出願番号.	
0-2	国際出願日	27.6.00
0-3	(受付印)	受領印
0-4	様式-PCT/R0/101 この特許協力条約に基づく国 際出願願書は、 右記によって作成された。	PCT-EASY Version 2.90 (updated 10.05.2000)
0-5	申立て 出願人は、この国際出願が特許 協力条約に従って処理されるこ とを請求する。	
0-6	出願人によって指定された受 理官庁	日本国特許庁 (R0/JP)
0-7	出願人又は代理人の登録記号	2000210P1010
1	発明の名称	低吸湿低複屈折樹脂組成物、これから得られる成 形材、シート又はフィルムおよび光学用部品
11	出願人 11-1 この欄に記載した者は 11-2 右の指定国についての出願人で ある。	出願人である (applicant only) 米国を除くすべての指定国 (all designated States except US)
11-4a	名称	日立化成工業株式会社
11-4aa	Name	HITACHI CHEMICAL CO., LTD.
11-5a	あて名:	163-0449 日本国 東京都 新宿区 西新宿二丁目1番1号 新宿三井ビル 私書箱233号
11-5ea	Address:	P. O. BOX 233, Shinjuku-Mitsui Building 1-1, Nishishinjuku 2-chome Shinjuku-ku, Tokyo 163-0449 Japan
11-6	国籍 (国名)	日本国 JP
11-7	住所 (国名)	日本国 JP

THIS PAGE BLANK (use reverse)

特許協力条約に基づく国際出願願書

原稿(出願用) - 印刷日時 2000年06月27日 (27.06.2000) 火曜日 16時02分43秒

III-1 III-1-1 III-1-2 III-1-4a III-1-4ea III-1-5a III-1-6ea III-1-6 III-1-7	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は 右の指定国についての出願人で ある。 氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名: Address: 国籍(国名) 住所(国名)	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only) 山下 幸彦 YAMASHITA, Yukihiko 290-0158 日本国 千葉県 市原市 ちはら台6-9-6 6-9-6, Chiharadai, Ichihara-shi, Chiba 290-0158 Japan 日本国 JP 日本国 JP
III-2 III-2-1 III-2-2 III-2-4a III-2-4ea III-2-5a III-2-6ea III-2-6 III-2-7	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は 右の指定国についての出願人で ある。 氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名: Address: 国籍(国名) 住所(国名)	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only) 岩田 修一 IWATA, Shuichi 290-0037 日本国 千葉県 市原市 飯沼173 飯沼寮126号室 linuma-ryo Room 126, 173 linuma, Ichihara-shi, Chiba 290-0037 Japan 日本国 JP 日本国 JP
III-3 III-3-1 III-3-2 III-3-4a III-3-4ea III-3-5a III-3-6ea III-3-6 III-3-7	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は 右の指定国についての出願人で ある。 氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名: Address: 国籍(国名) 住所(国名)	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only) 山中 哲郎 YAMANAKA, Tetsuo 290-0037 日本国 千葉県 市原市 飯沼173 飯沼寮146号室 linuma-ryo Room 146, 173 linuma, Ichihara-shi, Chiba 290-0037 Japan 日本国 JP 日本国 JP

THIS PAGE BLANK (uspto)

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本(出願用) - 印刷日時 2000年06月27日 (27.06.2000) 火曜日 16時02分43秒

III-4 III-4-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-4-2	右の指定国についての出願人で ある。	米国のみ (US only)
III-4-4-1 III-4-4-2 III-4-5-1	氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	吉田 明弘 YOSHIDA, Akihiro 290-0051 日本国 千葉県 市原市 君塚 3-6-16 サンライズシティ池田 A 208 Sunrise-city Ikeda A208, 3-6-16, Kimizuka, Ichihara-shi, Chiba 290-0051 Japan
III-4-5-4	Address:	
III-4-6 III-4-7	国籍 (国名) 住所 (国名)	日本国 JP 日本国 JP
III-5 III-5-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-5-2	右の指定国についての出願人で ある。	米国のみ (US only)
III-5-4-1 III-5-4-2 III-5-5-1	氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	牛窪 恵子 USHIKUBO, Keiko 297-0034 日本国 千葉県 茂原市 中の島町 752 752, Nakanoshima-cho, Mobara-shi, Chiba 297-0034 Japan
III-5-5-4 III-5-7	Address:	
III-5-8 III-5-9	国籍 (国名) 住所 (国名)	日本国 JP 日本国 JP
IV-1	代理人又は共通の代表者、通 知のあて名 下記の者は国際機関において右 記のごとく出願人のために行動 する。	代理人 (agent)
IV-1-1-1 IV-1-1-2 IV-1-2-1	氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	遠山 効 TOYAMA, Tsutomu 103-0004 日本国 東京都 中央区 東日本橋3丁目4番10号 ヨコヤマビル6階
IV-1-2-2	Address:	Yokoyama Building 6th floor 4-10, Higashi Nihonbashi 3-chome Chuo-ku, Tokyo 103-0004 Japan
IV-1-3 IV-1-4	電話番号 ファクシミリ番号	03-3669-6571 03-3669-6573

THIS PAGE BLANK (USPTO)

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本(出願用) - 印刷日時 2000年06月27日 (27.06.2000) 火曜日 16時02分43秒

V-1	その他の代理人	筆頭代理人と同じあて名を有する代理人 (additional agent(s) with same address as first named agent) 松倉 秀実: 川口 嘉之 MATSKURA, Hidemi; KAWAGUCHI, Yoshiyuki
V-2-1-1	氏名 Name(s)	
V-1	国の指定	EP: AT BE CH< CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU MC NL PT SE 及びヨーロッパ特許条約と特許協力条約の締約国である他の国
V-2	国内特許 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には括弧内に記載する。)	JP KR US
V-6	指定の確認の宣言 出願人は、上記の指定に加えて、規則4.9(b)の規定に基づき、特許協力条約のもとで認められる他の全ての国の指定を行う。ただし、V-6欄に示した国の指定を除く。出願人は、これらの追加される指定が確認を条件としていること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされることを宣言する。	
V-6	指定の確認から除かれる国	なし (NONE)
V1-1	先の国内出願に基づく優先権主張	
V1-1-1	先の出願日	1999年06月28日 (28.06.1999)
V1-1-2	先の出願番号	平成11年特許願第181181号
V1-1-3	国名	日本国 JP
V1-2	先の国内出願に基づく優先権主張	
V1-2-1	先の出願日	1999年06月28日 (28.06.1999)
V1-2-2	先の出願番号	平成11年特許願第181182号
V1-2-3	国名	日本国 JP
V1-3	先の国内出願に基づく優先権主張	
V1-3-1	先の出願日	2000年01月28日 (28.01.2000)
V1-3-2	先の出願番号	特願2000-24774
V1-3-3	国名	日本国 JP
V1-4	先の国内出願に基づく優先権主張	
V1-4-1	先の出願日	2000年01月28日 (28.01.2000)
V1-4-2	先の出願番号	特願2000-24775
V1-4-3	国名	日本国 JP
V1-5	先の国内出願に基づく優先権主張	
V1-5-1	先の出願日	2000年01月28日 (28.01.2000)
V1-5-2	先の出願番号	特願2000-24776
V1-5-3	国名	日本国 JP
V11-1	特定された国際調査機関(ISA)	日本国特許庁 (ISA/JP)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

特許協力条約に基づく国際出願書類

原本(出願用) - 印刷日時 2000年06月27日 (27.06.2000) 火曜日 18時02分43秒

	照合欄	用法の枚数	添付された電子データ
VIII-1	願書	5	-
VIII-2	明細書	42	-
VIII-3	請求の範囲	3	-
VIII-4	要約	1	op1010pct.txt
VIII-5	図面	0	-
VIII-7	合計	51	
	添付書類	添付	添付された電子データ
VIII-8	手数料計算用紙	✓	-
VIII-16	PCT-EASYディスク	-	フレキシブルディスク
VIII-17	その他	納付する手数料に相当する特許印紙を添付した書面	-
VIII-18	要約書とともに提示する図の番号		
VIII-19	国際出願の使用言語名:	日本語 (Japanese)	
IX-1	提出者の記名押印	小林三郎 大日本印刷	
IX-1-1	氏名(姓名)	遠山 効	日本

受理官庁記入欄

10-1	国際出願として提出された書類の実際の受理の日	
10-2	図面:	
10-2-1	受理された	
10-2-2	不足図面がある	
10-3	国際出願として提出された書類を補完する書類又は図面であってその後期間内に提出されたものの実際の受理の日(訂正日)	
10-4	特許協力条約第11条(2)に基づく必要な補完の期間内の受理の日	
10-5	出願人により特定された国際調査機関	ISA/JP
10-6	調査手数料未払いにつき、国際調査機関に調査用写しを送付していない	

国際事務局記入欄

II-1	記録原本の受理の日	
------	-----------	--

THIS PAGE BLANK (USF70)

E P

U S

特許協力条約

P C T

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
(PCT18条、PCT規則43、44)

出願人又は代理人 の書類記号	2000210 P1010	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。		
国際出願番号 PCT/JP00/04215	国際出願日 (日.月.年)	27.06.00	優先日 (日.月.年)	28.06.99
出願人(氏名又は名称) 日立化成工業株式会社				

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 4 ページである。

この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

- a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。
 - この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。
- b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。
 - この国際出願に含まれる書面による配列表
 - この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
 - 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表
 - 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
 - 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。
 - 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は 出願人が提出したものと承認する。

次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は 出願人が提出したものと承認する。

第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1ヶ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第_____図とする。 出願人が示したとおりである。

なし

出願人は図を示さなかった。

本図は発明の特徴を一層よく表している。

THIS PAGE BLANK (uspto)

第三欄 要約（第1ページの5の続き）

下記の重合体（A）、（B）及び/又は（C）を含む樹脂組成物（a）、重合体（A）、（B）及び（H）を含む樹脂組成物（b）、重合体（I）、（J）、ジフェニルシリコーン（D）及びフェノール系酸化防止剤（E）を含む樹脂組成物（c）を作成し、低吸湿、低屈折樹脂組成物を提供する。

（A）一般式（I）で示されるインデン又はインデン誘導体を含む重合体

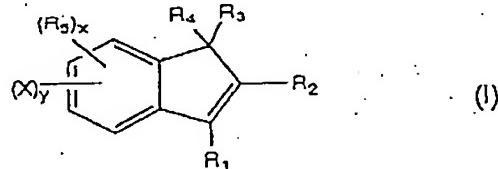
（B）ポリスチレン又はポリスチレン誘導体からなる誘導体

（C）スチレン又はスチレン誘導体と共に重合可能な单量体からなる重合体

（H）重合体（C）の側鎖に、一般式（I）で示されるインデン又はインデン誘導体を含む重合体が結合したグラフト重合体

（I）重合体（A）の側鎖に複素環構造を有する重合体

（J）重合体（C）の側鎖にカルボキシル基及び/又はフェノール性水酸基を有する重合体



THIS PAGE BLANK (USPS)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' C08L45/00, 25/00, G02B1/04, G11B7/24

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' C08L45/00-45/02, 25/00-25/18, G02B1/04, G11B7/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 10-231403, A (荒川化学工業株式会社), 02. 9月. 1998 (02. 09. 98), 特許請求の範囲, 【0001】 , 【0024】	1, 3-5, 19-21
Y	(ファミリーなし)	2
A		6-18, 22
EX	JP, 11-246733, A (鐘淵化学工業株式会社), 14. 9月. 1999 (14. 09. 99), 特許請求の範囲, 【0052】 - 【0053】 , 【0072】 (ファミリーなし)	1-2, 4-5, 19
X	EP, 393685, A (KAWASAKI STEEL CORPORATION), 24. 10月. 1990 (24. 10. 90), 特許請求の範囲, 第6頁第6-9行	1, 3-4, 19
Y	& JP, 3-47814, A, 特許請求の範囲, 第5頁左下欄8-12行, 実施例19.	20-21
A		2, 5-18, 22

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

11. 09. 00

国際調査報告の発送日

19.09.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

内田 靖恵

4 J 9553



電話番号 03-3581-1101 内線 3457

THIS PAGE BLANK (uspto)

C(続き) 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	US, 4066717, A (The Standard Oil Company), 3.1月. 1978 (03. 01. 78), 特許請求の範囲, 第1欄6-38行	1, 3, 6, 19
Y	& JP, 52-80341, A, 特許請求の範囲, 第2頁左上欄第18行-同頁右上 欄12行	4-5, 20-21
A		2, 7-18, 22

THIS PAGE BLANK (USPTO)